



Détermination expérimentale des caractéristiques physiques et chimiques de particules de suie émises par des turboréacteurs d'avion

David Delhay

► To cite this version:

David Delhay. Détermination expérimentale des caractéristiques physiques et chimiques de particules de suie émises par des turboréacteurs d'avion. Physique [physics]. Université de la Méditerranée - Aix-Marseille II, 2007. Français. NNT: . tel-00261972

HAL Id: tel-00261972

<https://theses.hal.science/tel-00261972>

Submitted on 10 Mar 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ DE LA MÉDITERRANÉE

AIX-MARSEILLE II

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES DE LA MATIÈRE

par

David DELHAYE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR

Mention : **Sciences des Matériaux, Physique, Chimie et Nanosciences**

*Détermination expérimentale des caractéristiques
physiques et chimiques de particules de suie
émises par des turboréacteurs d'avion*

soutenue le 10 décembre 2007
devant le jury composé de :

Rapporteurs :

Mme DESGROUX Pascale

Directrice de recherche au CNRS, PC2A, Lille

M. ROSSI Michel J.

Professeur à l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne

Examineurs :

M. FERRY Daniel

Chargé de Recherche au CNRS, CRMC-N, Marseille

Mme GIORGIO Suzanne

Professeur à l'Université de la Méditerranée, Marseille

M. PENANHOAT Olivier

Responsable des autorisations de vol, SNECMA, Villaroche

Mme RUIZ Eliane

Ingénieur Chercheur à l'ONERA, Châtillon

M. SUZANNE Jean

Professeur à l'Université de la Méditerranée, Marseille

M. VENDEL Jacques

Ingénieur Chercheur à l'IRSN, Saclay

Remerciements

Cette thèse aura été un long voyage qui m'aura permis de décrocher mes ailes de « chercheur ». Cela n'aurait pas pu se réaliser sans le concours de nombreuses personnes car la réussite de cette rotation tient moins qu'à son commandant de bord qu'aux « passagers » côtoyés. Je remercie infiniment :

- Les membres de la « *business* » classe :

Je remercie tout d'abord MM E.Rosencher, P.Touboul, P.Laroche et D.Guffond pour m'avoir permis de réaliser ma thèse au sein du groupe Impact du département de Mesure Physique de l'ONERA. Je remercie aussi Mmes A-L. Brasseur et E.Ruiz pour avoir successivement encadré ce travail.

Je remercie fortement mes directeurs de thèse, Jean Suzanne et Daniel Ferry, mes parfaits contrôleurs aériens, pour leur patience, pédagogie, conseils et chaleur humaine.

- Les membres de la classe *foudre* :

Philippe Lalande, le castor en chef, toujours de très bon conseil et prêt à partager sa passion des sciences,

Patrice Blanchet, le castor sportif, sans qui aujourd'hui, j'aurai encore deux mains « gauches »,

Alain Delannoy, celui qui m'aura fait découvrir la captivante modélisation atmosphérique,
Alain Broc : tout dans les jambes, tout dans les bras, tout dans la tête. « Grazie mille ».

- Les membres de la classe *givre* :

Gérard Gardette notre animateur et pourvoyeur de bonne humeur,

Emmanuel Montreuil, marié 4 enfants, un pédagogue né rempli de qualités. Merci pour nos nombreuses discussions et pour tous tes conseils.

- Les membres de la classe *impact* :

Weeded Ghedafi : et oui, je suis toujours en train de filer du mauvais coton,

François Garnier pour m'avoir accueilli lors de mes premiers mois à l'ONERA,

Richard Ramaroson pour nos discussions instructives et parfois passionnées,

Xavier Vancassel avec qui j'ai eu la chance de partager de si nombreuses discussions pas toujours scientifiques.

- Les membres de la classe *doctorant/post-doc* :

Laurent Chemartin, ainsi que Florent Guignery et Xuan Presteau mes derniers colocataires de bureau. Bon courage à vous et garder votre joie de vivre,

Dimitri Caro, avec qui j'ai partagé mon premier bureau et surtout de nombreuses discussions scientifiques et non scientifiques,

Ephi Maglaras qui durant ces deux années de cohabitation aura été un exemple pour moi.

- Les membres de la classe ***administration*** :

Sylvie Nicolle-Douet, Jean-Paul Aubert, Marie-Agnès Raoul, Joel Pigère pour leur disponibilité et bonne humeur.

Je me permets de faire un clin d'œil tout particulier à Hélène Meler et Claire Laroche pour avoir fait leur maximum pour me placer dans les meilleures conditions pour chacun de mes nombreux congrès.

- Les membres de la classe ***Marseille*** :

Serge Nitsche et Damien Chaudanson qui m'ont accompagnés dans le monde de la microscopie,

Jean-Yves Hoarau mon pourvoyeur de plan,

Francis « M. photo » Quintric,

Benjamin Demirdjian, le gardien des traditions provençales. Notre collaboration nous aura conduit loin, très loin...d'Austin à Salzburg en passant bien entendu par Marseille.

- Les ***autres passagers*** :

Enfin, je remercie toutes les étoiles qui m'ont aidées à me guider lors de ce voyage en y participant directement ou indirectement. Je citerai notamment mon seul et unique « binôme » de travail qui depuis 8 ans reste un soutien sans faille et une source de motivation inépuisable dans le travail.

Finalement, je dédie ce travail à mes parents et surtout à mon revenant de frère.

TABLE DES MATIÈRES

INTRODUCTION	1
I. GÉNÉRALITÉS	5
I.1. L'aérosol atmosphérique	5
I.2. La suie	6
I.2.1. Définition	6
I.2.2. Formation	6
I.2.3. Caractéristiques de la suie	7
I.2.3.1. Les particules primaires	7
I.2.3.2. Les agrégats	8
I.2.3.3. Les distributions en taille	12
II. DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX DE PRODUCTION ET D'ANALYSE	13
II.1. Les moteurs CFM56	13
II.1.1. Le banc d'essai	15
II.1.2. Les cycles d'essais	16
II.1.3. Mesures sur site	18
II.2. Techniques expérimentales de caractérisation	20
II.2.1. Microscopie électronique	21
II.2.1.1. Microscopie électronique à balayage : MEB	21
II.2.1.2. Microscopie électronique en transmission : MET	21
II.2.2. Spectrométrie dispersive d'énergie de rayons X : EDX	22
II.2.3. Spectroscopie InfraRouge à Transformée de Fourier : FTIR	22
II.2.4. Chromatographie	23
II.2.5. Spectrométrie de masse : MS	23
III. PRÉLÈVEMENTS DE PARTICULES DE SUIE ÉMISES PAR UN TURBORÉACTEUR D'AVION	25
III.1. Méthodes de prélèvement	25
III.1.1. Prélèvement par impaction	26
III.1.1.1. Le dispositif	26
III.1.1.2. Les supports	28
III.1.2. Prélèvement par filtration et par brossage	29

III.2. Choix de la méthode de prélèvement utilisée.....	30
III.2.1. Le pompage.....	30
III.2.2. Le brossage	31
III.2.3. L'impaction.....	31
III.3. Développement d'un support de prélèvement : cellule FTIR/MET.....	32
III.4. Conditionnement du matériel.....	33
 IV. CARACTÉRISATION EXPÉRIMENTALE DES PROPRIÉTÉS PHYSICO-CHIMIQUES DES SUIES	35
IV.1. Etude des suies émises par un CFM56-5C	35
IV.1.1. Caractérisation physique.....	35
IV.1.1.1. Morphologie et structure.....	35
IV.1.1.2. Distribution en taille des particules primaires.....	38
IV.1.1.3. Comparaison des distributions en taille des particules primaires	47
IV.1.1.4. Etude des agrégats	49
IV.1.2. Caractérisation chimique	54
IV.1.2.1. Spectrométrie de rayons X.....	54
IV.1.2.2. Spectroscopie infrarouge	55
IV.1.2.3. Chromatographie	56
IV.2. Etude des suies émises par un CFM56-5B	58
IV.2.1. Caractérisation physique.....	58
IV.2.1.1. Morphologie et structure.....	58
IV.2.1.2. Distribution en taille des particules primaires.....	60
IV.2.1.3. Comparaison des distributions en taille de particules primaires.....	65
IV.2.1.4. Etude des agrégats	66
IV.2.2. Caractérisation chimique	69
IV.2.2.1. Spectrométrie de rayons X.....	69
IV.2.2.2. Spectroscopie infrarouge	70
IV.2.2.3. Chromatographie	72
IV.3. Synthèse des résultats expérimentaux.....	73
 V. ANALYSE ET DISCUSSION DES RÉSULTATS.....	75
V.1. Influence de la préparation des échantillons sur la mesure de la taille des particules en microscopie électronique à balayage	75
V.1.1. Temps de sublimation	78
V.1.2. Intensité de sublimation.....	81

V.1.3. Conclusion	82
V.2. Création et validation d'une cellule spécifique de transport et de stockage des échantillons.....	83
V.2.1. Développement d'un moyen de transport et de conservation des échantillons	83
V.2.2. Validation des cellules.....	84
V.3. Discussion des résultats	85
 CONCLUSION.....	 94
 BIBLIOGRAPHIE	 97
 ANNEXES	 105

LISTE DES FIGURES

Figure 1	Bilan sur le forçage radiatif global de l'impact de l'aviation entre 1992 et 2000, basé sur l'IPCC 1999 et le programme TRADEOFF	1
Figure 2	Sources et impact de l'aérosol atmosphérique sur l'environnement	5
Figure 3	Formation des suies	7
Figure 4	Suies résultant de la pyrolyse de benzène : a) suie amorphe, b) suie graphitique (en pelure d'oignon)	8
Figure 5	Morphologie d'agrégats de dimensions fractales différentes	9
Figure 6	Schéma de principe d'un moteur CFM56 double corps double flux (HP : haute pression ; BP : basse pression)	13
Figure 7	Le CFM56 et ses principales applications	14
Figure 8	Description du banc d'essai : a) vue de profil du banc, b) vue du dessus du banc..	15
Figure 9	Effet de la chambre de détente du banc d'essai moteur	16
Figure 10	Diagramme des cycles d'endurance réalisé sur le banc d'essai SNECMA lors des campagnes de prélèvement d'échantillon de suie : (a) cycle d'endurance du CFM56-5C (type I) et (b) cycle d'endurance du CFM56-5B (type II)	17
Figure 11	Emplacement du capteur enregistreur de température et d'humidité relative sur le second dispositif.....	18
Figure 12	Relevé de température et d'humidité relative pour 3 cycles d'endurance de type I	19
Figure 13	Relevé de température et d'humidité relative pour 3 cycles d'endurance de type II	19
Figure 14	Papier indicateur de pH double réactif avant (a) et après (c) exposition aux émissions d'un moteur d'avion, (b) code couleur pour l'interprétation du papier	20
Figure 15	Microscope électronique à balayage	21
Figure 16	Description du banc d'essai : a) vue de profil du banc, b) vue du dessus du banc..	25
Figure 17	Plaque pour support et fixation	26
Figure 18	Dispositif n°1 de prélèvement passif.....	27
Figure 19	Dispositif n°2 de prélèvement passif.....	27
Figure 20	Dispositif n°3 de prélèvement passif.....	28
Figure 21	Dispositif de prélèvement par pompage utilisé dans le cadre de PRIMEQUAL 2 par le Laboratoire Inter-universitaire des Systèmes Atmosphériques.....	29
Figure 22	Echantillon de suie prélevé par pompage et observé par MEB	30
Figure 23	Echantillon de suie prélevé par brossage et observé par MEB.....	31
Figure 24	Echantillon de suie prélevé par impaction et observé par MEB.....	32
Figure 25	Support FTIR/MET	33
Figure 26	agrégats de suie émis par un turboréacteur CFM56-5C et observés en MEB (a, b, c) et MET (d, e, f, g).....	35
Figure 27	(a) particule de suie élémentaire par microscopie électronique en transmission – (b) diffraction de cette particule élémentaire de suie (CFM56-5C).....	36
Figure 28	Structures solides à textures de symétrie sphérique : (a) texture sphérique concentrique, (b) texture sphérique radiale, (c) texture sphérique statistique	36
Figure 29	Exemple de profil d'intensité d'un cliché de diffraction.....	37
Figure 30	Principe de mesure des diamètres de particules primaires de suie : (a) image MEB d'un échantillon de suie, (b) agrandissement d'un agrégat et (c) composition de l'agrégat en particules primaires	38

Figure 31	Comparaison des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors de chacun des trois jours de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage.....	39
Figure 32	Distribution de type I.....	42
Figure 33	Distribution de type II	42
Figure 34	Distribution (MEB) en taille des particules primaires de suie collectées derrière un moteur CFM56-5C	43
Figure 35	Distribution en taille de particules primaires de suie des deux dispositifs mis en place lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5C	44
Figure 36	Distribution en taille de particules primaires de suie des grilles MET du premier dispositif mis en place lors de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage.....	45
Figure 37	Distribution en taille de particules primaires de suie des grilles MET du deuxième dispositif mis en place lors de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage.....	46
Figure 38	Distribution (MET) en taille des particules primaires de suie collectées derrière un moteur CFM56-5C	47
Figure 39	Comparaisons des distributions en taille des particules primaires obtenues par MET et MEB lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5C	48
Figure 40	Distribution du nombre d'agrégat en fonction du nombre de particules primaires les composant, pour des suies provenant d'un moteur CFM56-5C	50
Figure 41	Détermination de la dimension fractale 2D des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5C	51
Figure 42	Distribution des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5C en fonction de leur diamètre de giration	53
Figure 43	Spectre infrarouge de la suie émise par un moteur CFM56-5B après soustraction du signal de l'huile (avec ν_a : vibration de valence asymétrique, ν_s : vibration de valence symétrique, δ_a : vibration de déformation asymétrique et δ_s : vibration de déformation symétrique).....	56
Figure 44	Structure de la molécule de : (a) pyrène, (b) fluoranthène, et (c) phénanthrène ..	57
Figure 45	agrégats de suie émis par un turboréacteur CFM56-5B et observés en MEB (a, b, c) et MET (d, e, f, g).....	58
Figure 46	(a) particules primaires de suie observées par microscopie électronique en transmission et (b) diffractogramme de ces particules (moteur CFM56-5B).....	59
Figure 47	Comparaison des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées sur différentes membranes	60
Figure 48	Distribution (MEB) en taille des particules primaires de suie collectées derrière un moteur CFM56-5B	62
Figure 49	Distribution en taille de particules primaires de suie des quatre grilles MET mises en place lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5B.....	63
Figure 50	Distribution (MET) en taille des particules primaires de suie collectées derrière un moteur CFM56-5B	64
Figure 51	Comparaisons des distributions des particules primaires obtenues par MET et MEB lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5B	65
Figure 52	Distribution du nombre d'agrégat en fonction du nombre de particules primaires de suie les coconstituant, pour des suies émises par un moteur CFM56-5B	66
Figure 53	Détermination de la dimension fractale 2D des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5B	67
Figure 54	Distribution des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5B en fonction de leur diamètre de giration	68

Figure 55	Spectre d'analyse chimique élémentaire d'un agrégat de suie	69
Figure 56	Spectre infrarouge de la suie émise par un moteur CFM56-5B après soustraction du signal de l'huile (avec ν_a : vibration de valence asymétrique, ν_s : vibration de valence symétrique, δ_a : vibration de déformation asymétrique et δ_s : vibration de déformation symétrique).....	71
Figure 57	Comparaison des distributions en taille de particules primaires collectées derrière un moteur CFM56-5C, établies à partir de clichés MET et MEB	75
Figure 58	Comparaison des distributions en taille des particules primaires collectées derrière un moteur CFM56-5B, établies à partir de clichés MET et MEB	76
Figure 59	Conséquence du processus de métallisation sur la forme des agrégats de suie....	77
Figure 60	Effet du temps de dépôt de carbone (métallisation de l'échantillon) sur la distribution en taille des particules primaires de suie déterminée à partir de clichés MEB	79
Figure 61	Influence du temps de métallisation sur la distribution en taille des particules primaires de suie : (a) cas des échantillons prélevés derrière le moteur CFM56-5C, b) cas des échantillons prélevés derrière le moteur CFM56-5B	80
Figure 62	Influence de la répétition du processus de métallisation sur la valeur du diamètre moyen géométrique	81
Figure 63	Influence de l'intensité de sublimation sur les distribution en taille des particules primaires de suie d'échantillons issus d'un moteur CFM56-5B.....	82
Figure 64	une cellule de stockage.....	83
Figure 65	Dégradation du pyrène et du fluoranthène sous différentes configurations de stockage	84
Figure 66	Absorbion par le corps humain des particules selon leur taille [Tron 2002].....	93

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1	Grandeurs fractales et diamètre moyen de particules primaires de suie issues de la littérature.....	11
Tableau 2	Ecart-types géométriques σ_g des distributions en taille de particules déterminés pour différents turboréacteurs mentionnés dans la littérature.....	12
Tableau 3	Caractéristiques des moteurs CFM56 étudiés.....	14
Tableau 4	Paramètres d'un cycle correspondant à la norme OACI	16
Tableau 5	Supports de collecte et leurs applications.....	29
Tableau 6	Distances réticulaires moyennes mesurées (CFM56-5C).....	37
Tableau 7	Comparaison des coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors de chacun des trois jours de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage.....	39
Tableau 8	Paramètres de l'air admis dans le moteur lors des trois jours de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage de type I.....	40
Tableau 9	Comparaison des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors des trois jours de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage sur plusieurs membranes de porosité 0,22 μm et 0,40 μm	41
Tableau 10	Différence sur l'effectif relatif cumulé entre les deux types de distribution	41
Tableau 11	Coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie des deux dispositifs mis en place lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5C	44
Tableau 12	Coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie des grilles MET du premier dispositif mis en place lors de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage.....	45

Tableau 13 Coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie des grilles MET du deuxième dispositif mis en place lors de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage.....	46
Tableau 14 Paramètres numériques des distributions des particules primaires obtenues lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5C.....	48
Tableau 15 Répartition du nombre de particules primaires composant les agrégats de suie observés derrière un moteur CFM56-5C.....	50
Tableau 16 Paramètres de la distribution des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5C en fonction de leur diamètre de giration.....	53
Tableau 17 Analyse chimique élémentaire par EDX sur des échantillons issus d'un moteur CFM56-5C.....	54
Tableau 18 Variation de masse des filtres en fibres de verre (GFF).....	57
Tableau 19 Distances réticulaires moyennes mesurées (CFM56-5B).....	59
Tableau 20 Données relatives aux distributions en taille des particules primaires de suie déterminées par MEB(moteur CFM56-5B).....	61
Tableau 21 Paramètres de l'air admis dans le moteur CFM56-5B lors de la collecte durant les cycles décollage/atterrissage de type II.....	61
Tableau 22 Paramètres de la distribution MEB en taille des particules primaires de suie mesurée lors de collecte derrière un moteur CFM56-5B.....	62
Tableau 23 Paramètres des distributions en taille des particules primaires de suie des quatre grilles MET mises en place lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5B	63
Tableau 24 Coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie des grilles MET du premier dispositif mis en place lors de collecte derrière le moteur CFM56-5B pour des cycles décollage/atterrissage.....	64
Tableau 25 Paramètres des distributions en taille des particules primaires de suie obtenues lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5B.....	66
Tableau 26 Répartition du nombre de particules primaires composant les agrégats de suie observés derrière un moteur CFM56-5B.....	67
Tableau 27 Paramètres de la distribution des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5B en fonction de leur diamètre de giration.....	68
Tableau 28 Analyse chimique élémentaire par micro-analyse X d'échantillons issus du moteur CFM56-5B.....	70
Tableau 29 Variation de masse des filtres en fibres de verre.....	72
Tableau 30 Synthèse des données expérimentales établies sur les échantillons de suie émis par les turboréacteurs CFM56-5C et CFM56-5B.....	73
Tableau 31 Paramètres des distributions en taille des particules primaires collectées derrière les moteurs CFM56-5C et CFM56-5B.....	76
Tableau 32 Etude de l'effet du temps de métallisation sur les paramètres des distributions en taille des particules primaires de suie.....	78
Tableau 33 Paramètres des distributions en taille des particules primaires de suie obtenues après métallisation à différentes intensités : 17A, 20A et 23A.....	81
Tableau 34 Quantité moyenne de matière (suie + matrice) collectée sur les filtres en fibres de verre derrière chaque moteur par cycle d'exposition.....	85
Tableau 35 Rapport entre les valeurs des distances réticulaires.....	86
Tableau 36 Température et pression moyennes rencontrées au niveau des chambres de combustion des turboréacteurs CFM56-5C et CFM56-5B lorsqu'ils fonctionnent à plein régime(données SNECMA).....	87
Tableau 37 Moyennes géométriques de distributions en taille issues des différentes études de moteurs d'avion.....	90

Tableau 38 Comparaison des écarts type géométriques σ_g des distributions en taille des agrégats de suie établies pour plusieurs moteurs	90
Tableau 39 Composition chimique élémentaire de suie	91
Tableau 40 Emissions comparées des moteurs D30KU et CFM56-5C et 5B lors du cycle de référence de l'OACI	92
Tableau 41 Comparaison de suies issues d'un moteur d'avion et d'un moteur diesel automobile	93
Tableau 42 Comparaison des coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors du jour 1 de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage sur plusieurs membranes de porosité 0,22 μm	107
Tableau 43 Comparaison des coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors du jour 2 de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage sur plusieurs membranes de porosité 0,22 μm	107
Tableau 44 Comparaison des coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors du jour 3 de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage sur plusieurs membranes de porosité 0,40 μm	107
Tableau 45 Variation de masse des filtres en fibres de verre (GFF) et en quartz (Q) exposés aux émissions du moteur CFM56-5C.....	108
Tableau 46 Variation de masse des filtres en fibres de verre (GFF) et en quartz (Q) exposés aux émissions du moteur CFM56-5B.....	109

GLOSSAIRE

AFM	Microscopie à Force Atomique (Atomic Force Microscopy)
BP	Basse Pression
DMA	Analyseur différentiel de mobilité (Differential Mobility Analyser)
ELPI	Impacteur Electrostatique à Basse Pression (Electrostatic Low Pressure Impactor)
FMPS	Analyseur rapide de la distribution en taille des particules (Fast Mobility Particle Sizer)
GFF	Filtres en fibres de verre (Glass Fiber Filter)
HAP	Hydrocarbure Aromatique Polycyclique
HP	Haute Pression
MEB	Microscope Electronique à Balayage
MET	Microscope Electronique en Transmission
OACI	Organisation Internationale de l'Aviation Civile (International Civil Aviation Organization)
SMPS	Analyseur de mobilité des particules (Scanning Mobility Particle Sizer)
u.m.a.	unité de masse arbitraire

NOMENCLATURE

a_0		amplitude/ordonnée du maximum de la fonction log-normale
a_1		moyenne géométrique de la fonction log-normale (abscisse du maximum)
a_2		écart-type de la fonction log-normale
A	(nm ²)	aire projetée d'un agrégat
\bar{A}_p	(nm ²)	aire moyenne projetée d'une particule primaire
D_f		dimension fractale
$D_{f,2D}$		dimension fractale projetée
$D_{f,3D}$		dimension fractale 3D
d_g	(nm)	diamètre de giration
$d_{g,2D}$	(nm)	diamètre de giration projeté
$d_{g,3D}$	(nm)	diamètre de giration 3D
$\bar{d}_{g,2D}$	(nm)	diamètre de giration projeté moyen
$\bar{d}_{g,3D}$	(nm)	diamètre de giration 3D moyen
d_{hkl}	(Å)	distance entre deux plans réticulaires
\bar{D}_m	(nm)	diamètre de mobilité électrique moyen
d_p	(nm)	diamètre d'une particule primaire
\bar{d}_p	(nm)	diamètre moyen d'une particule primaire
k_a		coefficient de détermination de D_f
k_f		préfacteur fractal
k_L		préfacteur fractal lié à la longueur maximum projetée
L	(nm)	longueur maximum projetée d'un agrégat
N		nombre de particules primaires constituant un agrégat
N_{classe}		nombre de particules pour une classe de taille de diamètres donnés
N_{total}		nombre de particules totales mesurées
R^2		coefficient de régression
R_{hkl}	(mm)	rayon d'un anneau de diffraction
RH	(%)	Humidité Relative
T	(°C)	température
α		coefficient de détermination de D_f
λL	(mmÅ)	constante spécifique aux conditions de réglage du MET
σ_g		écart type géométrique

INTRODUCTION

La croissance du trafic aérien est en augmentation constante depuis quelques décennies et les prévisions d'évolution entre 2006 et 2025 [Airbus 2006], [Boeing Company 2006] envisagent une croissance d'environ 5 % par an. Malgré les améliorations technologiques des moteurs, la quantité de carburant consommé va augmenter. Par ailleurs, de nombreuses questions se posent désormais quant aux impacts environnementaux et sanitaires des émissions aéronautiques et de récentes études ont révélé que les activités aéronautiques ont un impact sur le climat [Penner 1999], [Schumann 2005].

La Figure 1 illustre les différents effets des émissions aéronautiques sur le bilan global radiatif de l'atmosphère de la Terre. Ils peuvent être directs :

- absorption et diffusion des radiations solaire et terrestre
- modification de la composition chimique de l'atmosphère

et indirects :

- modification du bilan radiatif de l'atmosphère par l'augmentation de la couverture nuageuse.

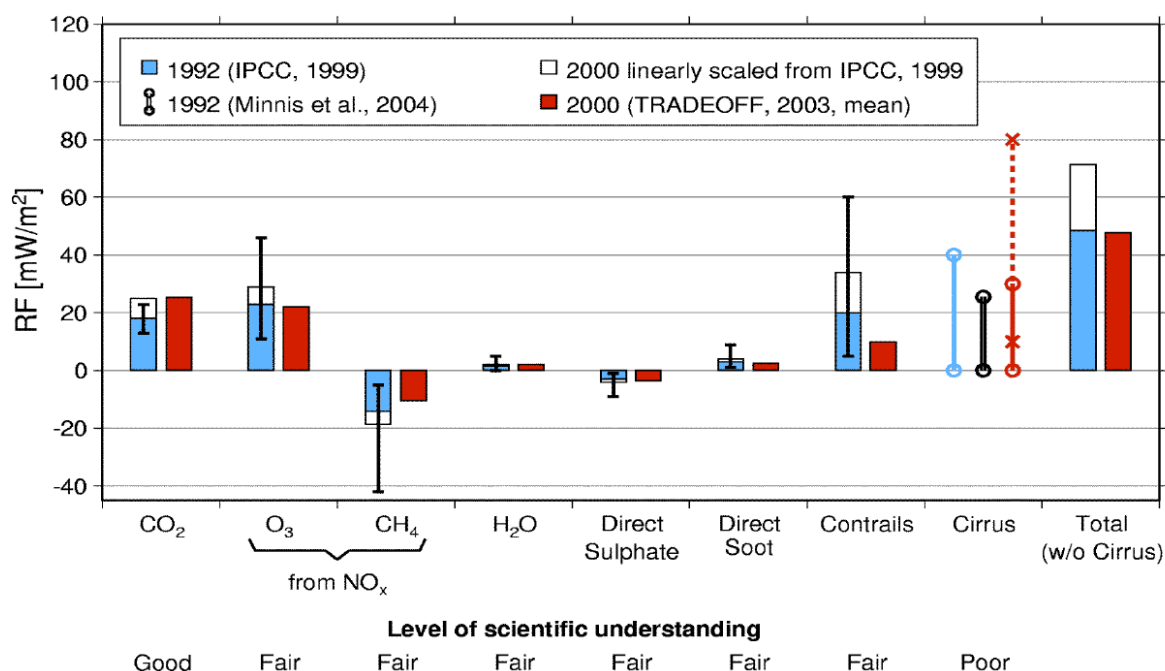


Figure 1 Bilan sur le forçage radiatif global de l'impact de l'aviation entre 1992 et 2000, basé sur l'IPCC 1999 et le programme TRADEOFF [Sausen 2005]

Cependant, évaluer et comprendre l'impact environnemental de l'aviation est difficile car de nombreuses incertitudes existent sur la quantification des effets précédemment mentionnés. Les moteurs d'avion émettent différents polluants dont des aérosols, essentiellement constitués de particules de suie, directement injectés dans les zones aéroportuaires et plus globalement dans les zones sensibles de l'atmosphère que sont la troposphère et la basse stratosphère. Les suies peuvent agir comme noyaux de condensation de la glace et ainsi conduire à la formation de traînées de condensation (contrails) [Blake 1995], qui peuvent ensuite évoluer vers la formation de nuages de type cirrus [Seinfeld 1998],

[Ruiz 2007]. De plus, les suies relarguées par les moteurs peuvent modifier la composition particulaire de l'atmosphère et participer à la modification de la composition chimique de l'atmosphère en étant le siège, ou en initiant, des réactions hétérogènes [Ammann 1998], [Grassian 2002]. Enfin, la taille submicrométrique des suies d'origine aéronautique génère, comme pour les émissions de suie par les automobiles, des problématiques liées à la pénétration de ces particules dans l'organisme et à leurs effets sur la santé [Highwood 2006], [Tron 2002]. Des modèles numériques de simulation visant à comprendre et à quantifier les mécanismes physiques et chimiques impliqués dans tous les phénomènes précédemment décrits se développent, mais le faible volume voire l'absence de données expérimentales caractérisant les propriétés physico-chimiques (morphologie, structure, chimie de surface...) des suies d'avion conduit à l'utilisation d'hypothèses plus ou moins réalistes.

Afin de pallier à ce déficit de caractérisation expérimentale, deux approches ont été développées. La première consiste à mesurer et caractériser l'ensemble des émissions gazeuses et particulaires derrière un moteur d'avion. Schumann *et al.* [Schumann 1996] ont ainsi réalisé au cours des projets SULFUR successifs des mesures en vol, derrière un avion, où la majeure partie des émissions a pu être identifiée et quantifiée. Néanmoins, en raison de contraintes de turbulence qu'engendre un avion en vol, ces mesures n'ont été réalisées qu'à plusieurs centaines de mètres derrière l'avion cible. Wey *et al.* [Wey 2006] et Anderson *et al.* [Anderson 2005] ont quant à eux effectué des mesures au sol lors des projets APEX. Ces mesures ont apporté des informations supplémentaires car les prélèvements ont été effectués à distances allant de 1 à 43 mètres derrière un moteur d'avion. Cependant, là encore, les contraintes techniques (vitesse du flux, environnement ambiant) n'ont pas rendu possible l'étude précise des propriétés des suies.

La seconde approche consiste à mesurer et caractériser les émissions directement à la sortie d'une chambre de combustion de moteur ou d'un brûleur alimenté par du carburant aéronautique. Ces configurations d'installation sont toutefois moins représentatives qu'un turboréacteur placé sur un avion car elles ne sont composées que d'une partie des éléments du moteur et, de surcroît, les températures et/ou pressions de fonctionnement ne correspondent pas aux conditions « réelles » d'utilisation commerciale. Cependant, il est possible d'étudier les suies émises par de tels dispositifs et Popovitcheva *et al.* [Popovitcheva 2000] et Ferry *et al.* [Ferry 2002] ont ainsi déterminé les propriétés physico-chimiques de suies issues d'une chambre de combustion et d'un brûleur alimentés par du carburant aéronautique russe (TC1). Le même type de travail a été réalisé dans le cadre du projet CAPAS (Projet du Département Aéronautique et Espace du Ministère Délégué à la Recherche et aux Nouvelles Technologies, 2003-2005) mais en employant cette fois un brûleur alimenté par du kérosène. Lors du programme européen Partemis [Wilson 2004], une chambre de combustion a été étudiée mais les mesures de caractérisation des particules ont été perturbées par des problèmes liés à la ligne de prélèvement.

La combinaison des deux approches a permis d'évaluer les quantités de suie émises par les moteurs d'avion mais n'ont permis jusqu'à ce jour de déterminer ni leurs caractéristiques physiques et chimiques, ni leur réactivité. Cette situation résulte notamment de la difficulté à réaliser des expériences avec un moteur d'avion en raison du coût élevé des installations nécessaires à son fonctionnement d'une part, et des contraintes techniques importantes qu'engendre ce type de moteur d'autre part.

Dans ce contexte, notre étude a donc pour objectifs de *i)* prélever et conditionner des échantillons de suie émis par un moteur d'avion commercial et *ii)* déterminer leurs caractéristiques physico-chimiques en étudiant la morphologie, la taille, la structure, et la composition chimique des particules. La réalisation de cette étude a été rendue possible grâce

à la société SNECMA (groupe SAFRAN) qui nous a permis d'implanter sur un banc d'essais le dispositif de prélèvement d'échantillons que nous avons développé. Ce dispositif a été placé derrière des moteurs d'avion, de la famille CFM56, fonctionnant en conditions réelles.

Le prélèvement d'échantillons sur un banc d'essai permet de recueillir sélectivement ce qui est émis par le moteur d'avion car l'enceinte est quasi fermée et l'air alimentant le moteur passe préalablement par un filtre électrostatique. Au cours de ce travail, les prélèvements ont été réalisés lors de séries de cycles et non de phases spécifiques car le banc d'essai suivait une activité commerciale. Cela a donc rendu impossible l'identification de l'impact spécifique de chaque phase (roulage, décollage, montée, descente, atterrissage) sur les caractéristiques physico-chimiques des suies émises. Toutefois, comme un cycle regroupe toutes ces phases, l'accumulation de plusieurs cycles permet d'évaluer l'émission moyenne d'un moteur d'avion en fonctionnement.

Notre démarche a consisté d'abord à développer un dispositif spécifique permettant de collecter des échantillons de suie, capable de résister aux contraintes mécaniques, thermiques et chimiques imposées par le fonctionnement des turboréacteurs. Les caractéristiques physico-chimiques des particules primaires de suie et des agrégats prélevés ont ensuite été déterminées en utilisant diverses techniques expérimentales. Enfin, ces propriétés ont été comparées aux données existant dans la littérature.

Le premier chapitre de ce mémoire est consacré à une introduction sur le mode de formation des particules de suie et à une description de la nature et des caractéristiques morphologiques des particules primaires et des agrégats de suie.

Le deuxième chapitre décrit les dispositifs expérimentaux utilisés au cours de ce travail. Le banc d'essai, les moteurs CFM56 et leurs conditions de fonctionnement sont présentés, ainsi que les diverses techniques expérimentales mises en œuvre pour déterminer les caractéristiques physico-chimiques des particules de suie.

Dans le troisième chapitre, les différents systèmes de prélèvement de particules de suie mis au point et utilisés lors de cette étude derrière les turboréacteurs sont décrits, comparés et discutés.

Le quatrième chapitre présente les résultats expérimentaux obtenus lors de l'étude d'échantillons de suie prélevés derrière des turboréacteurs CFM56-5C et CFM56-5B. Les particules primaires et les agrégats sont étudiés et les données concernant leur structure, leur morphologie, leur distribution en taille et en nombre, ainsi que leur composition chimique élémentaire et surfacique sont présentées.

Enfin, le cinquième et dernier chapitre se divise en trois parties. La première est consacrée à la comparaison des résultats obtenus avec deux techniques de microscopie électronique et à l'influence de la préparation des échantillons nécessaire pour l'étude en microscopie électronique à balayage. La seconde partie présente la cellule de transport et de stockage des échantillons. Elle a été créée et validée lors de ce travail car il nous a paru intéressant de se doter d'un outil qui pourrait accroître l'efficacité de la gestion de nos échantillons entre leur prélèvement et leur analyse. Dans la troisième partie, une comparaison est effectuée entre les résultats expérimentaux obtenus lors de cette étude et ceux décrits dans la littérature.

I. GÉNÉRALITÉS

I.1. L'aérosol atmosphérique

L'aérosol atmosphérique est une entité complexe. L'Agence Européenne de l'Environnement le définit comme un système composé de particules solides ou liquides en suspension dans une phase gazeuse et ayant une vitesse de sédimentation négligeable.

Il peut être directement émis (aérosol primaire) ou résulter de la conversion de certains gaz en particules (aérosol secondaire). La diversité des sources est importante et la plus grande part des émissions est d'origine naturelle puisque 94 % en masse est constituée de sels marins et de poussières minérales (désertique ou volcanique). Le reste est d'origine anthropique (combustions liées aux transports ou à l'industrie, chauffage...) [Delmas 2005]. Une représentation schématisée des sources d'aérosols et de leurs impacts sur l'environnement est illustrée sur la Figure 2. La présence d'aérosols dans l'atmosphère modifie l'équilibre climatique par des effets directs comme l'absorption et la diffusion de la lumière qui conduit à une modification du bilan radiatif (-1 W.m^{-2} [Delmas 2005], [Penner 1999]), et des effets indirects au travers de la modification de la composition chimique de l'atmosphère par des réactions hétérogènes. Par ailleurs, la présence d'aérosols tels que les suies dans l'atmosphère peut présenter des risques pour la santé liés à leur taille et leur composition chimique.

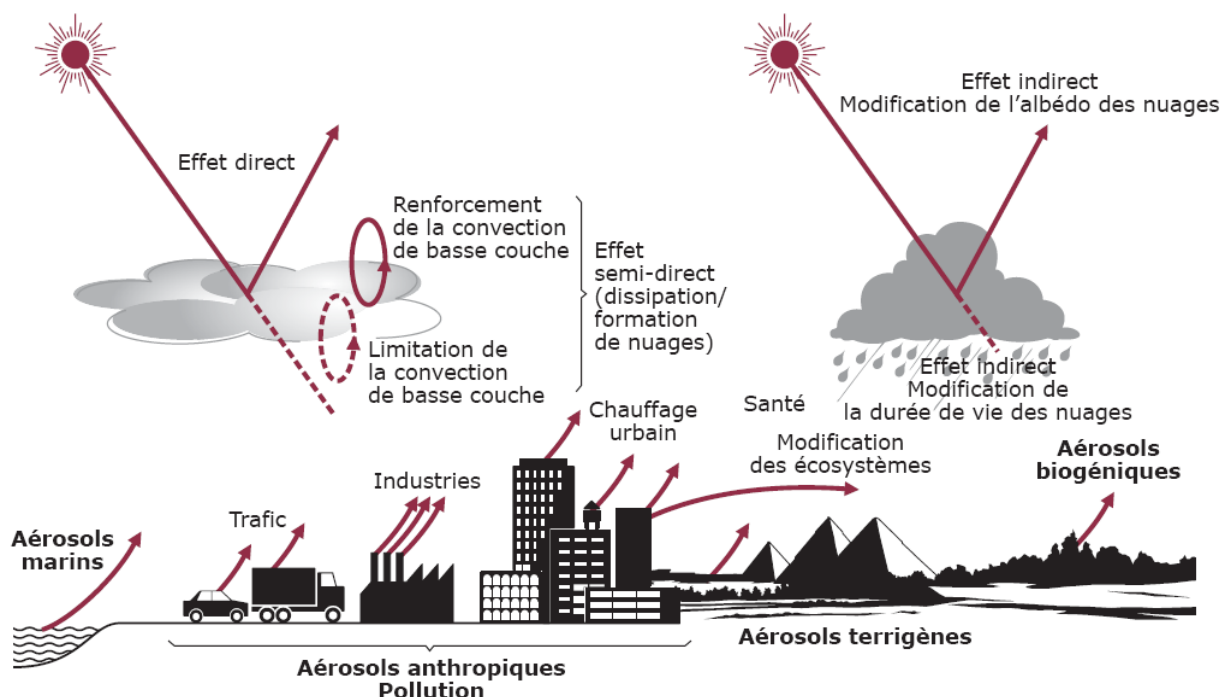


Figure 2 Sources et impact de l'aérosol atmosphérique sur l'environnement [Chazette 2004]

I.2. La suie

I.2.1. Définition

De nombreuses discussions lors de rencontres internationales ont fait ressortir un besoin de clarté en ce qui concerne la terminologie utilisée des termes liés à la suie : suie, agrégats de suie, et échantillon de suie. Il est donc important de définir les termes concernant la suie qui seront utilisés dans ce manuscrit.

La suie est un ensemble de composés résultant de la combustion incomplète de combustible (ici le kérosène) absorbant la lumière [Seinfeld 2006]. Elle se forme par condensation d'hydrocarbures dans les zones riches des flammes, c'est-à-dire les zones où existe un excès de carburant.

La particule élémentaire de suie est une sphère de petit diamètre (quelques nanomètres) et l'assemblage des particules primaires conduit à une structure tridimensionnelle nommée agrégat de suie. Il peut se présenter sous différentes morphologies allant d'un bloc compact à une chaîne allongée [Groupe français de combustion].

Enfin, un échantillon de suie, comprend la suie et la matrice (autres composés comme les oxydes métalliques...) que nous recueillons lors des prélèvements.

I.2.2. Formation

Les mécanismes détaillés de la formation de suie lors d'une combustion sont encore mal connus même si le processus général est relativement bien établi. Il se divise en 6 étapes [Richter 2000] schématisées sur la Figure 3 :

- **1. Formation des molécules précurseurs de suie.** De petites entités moléculaires (C_2 , C_3 ,...) conduisent à la formation de molécules d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), plus lourdes (500-1000 u.m.a.), par des réactions d'addition et de recombinaisons.
- **2. Nucléation, formation de particules de suie à partir des molécules de HAP.** Il y a conversion d'un système moléculaire à un système particulaire où les particules ont un poids moléculaire voisin de 2000 u.m.a.
- **3. Croissance des particules par addition de molécules et de radicaux provenant de la phase gazeuse.** Ce processus n'affecte pas le nombre de particules de suie.
- **4. Coagulation via des collisions particules.** Les collisions entre particules augmentent significativement la taille des particules résultantes et diminuent le nombre total de particules sans toutefois changer la masse totale de suie.
- **5. Pyrolyse des particules.** Les particules formées, soumises à des conditions pyrolytiques dans la zone de postcombustion, subissent des réactions d'élimination de groupements fonctionnels, des cyclisations, des condensations aromatiques, et des fusions aromatiques par déshydrogénation, par croissance et alignement des couches polyaromatiques.
- **6. Oxydation.** L'oxydation des HAP et des particules de suie est un processus qui entre en compétition avec la formation de ces espèces et conduit à la formation de monoxyde de carbone et de dioxyde de carbone. Les principaux agents oxydants sont

i) le radical hydroxyl OH^\bullet dans des conditions de combustion riche, ii) le radical oxygène O^\bullet et le dioxygène O_2 dans des conditions de combustion pauvre.

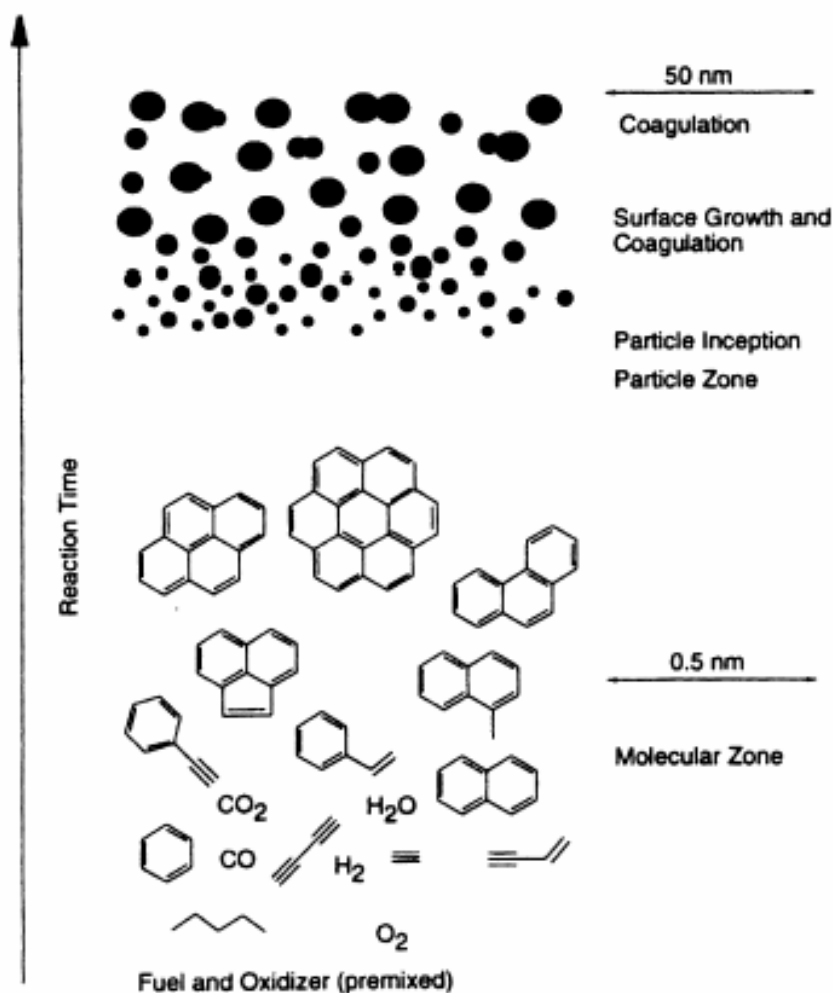


Figure 3 Formation des suies [Richter 2000]

I.2.3. Caractéristiques de la suie

Les paramètres qui caractérisent la suie sont fonction de l'échelle d'étude. En effet, les éléments qui définissent les particules primaires de suie ne sont pas les mêmes que ceux qui définissent les agrégats.

I.2.3.1. Les particules primaires

La particule primaire (ou élémentaire) correspond à l'entité de base. Elle est définie par sa morphologie, sa structure et son diamètre ou sa longueur maximale. Ces trois caractéristiques dépendent du processus de combustion et peuvent être très variables. Les particules primaires de suie sont essentiellement composées de carbone et présentent des morphologies très diverses qui vont de la sphère à une morphologie non définie [Popovitcheva 2000], [Ferry

2002], [Demirdjian 2007], [Smekens 2007]. Par ailleurs, les observations montrent que la structure des particules primaires de suie est également très variable puisqu'elle peut-être de type amorphe (Figure 4a) ou de type graphitique (Figure 4b). Enfin, bien qu'il existe une variabilité du diamètre ou de la longueur maximale de ces particules et de la distribution qui y est associée; l'ordre de grandeur reste à l'échelle nanométrique.

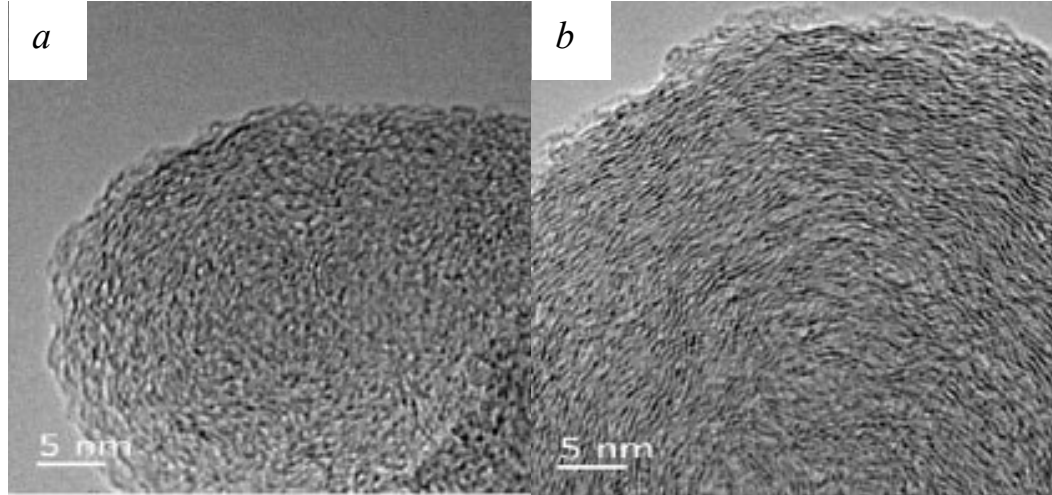


Figure 4 *Suies résultant de la pyrolyse de benzène : a) suie amorphe, b) suie graphitique (en pelure d'oignon) [Vander Wal 2004]*

1.2.3.2. Les agrégats

Les agrégats de particules primaires sont des structures tridimensionnelles (3D) complexes. La nature fractale ou plus précisément « quasi-fractale » des agrégats est communément admise [Baron 2001], [Meakin 1989]. En effet, ils ne respectent pas strictement la définition des objets fractals car ils ne présentent pas d'autosimilarité de la structure quelle que soit l'échelle. Toutefois, en accord avec le vocabulaire utilisé dans la littérature, le terme fractal sera préféré à « quasi-fractal » dans ce manuscrit.

Pour déterminer la dimension fractale des agrégats à partir de l'analyse de clichés MET, il faut déterminer le diamètre moyen des particules primaires les composant (\bar{d}_p), le nombre de particules primaires (N) par agrégat et la longueur maximale projetée des agrégats (L). La dimension fractale D_f et le préfacteur fractal k_f sont alors établis en utilisant les relations [Koylu 1995], [Koylu 1997], [Meakin 1989], [Neer 2006] :

$$N = k_L \cdot \left(\frac{L}{\bar{d}_p} \right)^{D_f} \quad (1)$$

où k_L est le préfacteur lié à la longueur maximum projetée

et

$$k_f = k_L \cdot \left(\frac{D_f + 2}{D_f} \right)^{\frac{D_f}{2}} \quad (2)$$

La dimension fractale permet de quantifier la compacité d'un objet dans l'espace. Une valeur proche de 1,5 représente une répartition plutôt aérée, tandis qu'une valeur de 3 correspond à une structure très compacte. La dimension fractale permet aussi d'appréhender le ou les processus de formation des agrégats. Lorsque la valeur $D_f \leq 2$, le processus dominant d'agrégation est de type « amas-amas » où la croissance des agrégats résulte des collisions et de l'adhésion entre amas déjà formés. Ce mécanisme explique en partie la formation des structures aérées et peu compactes. Lorsque $D_f > 2,5$, le processus de formation prépondérant est de type « particule-agrégat ». Il correspond à la coalescence entre particules primaires et agrégats. Enfin, lorsque $2 \leq D_f \leq 2,5$, il y a combinaison des deux processus précédemment exposés. La Figure 5 illustre le lien entre la dimension fractale d'un agrégat et sa compacité. Enfin, Le préfacteur k_f est surtout sensible à la nature du combustible et permet de pouvoir différencier des agrégats possédant une dimension fractale proche.

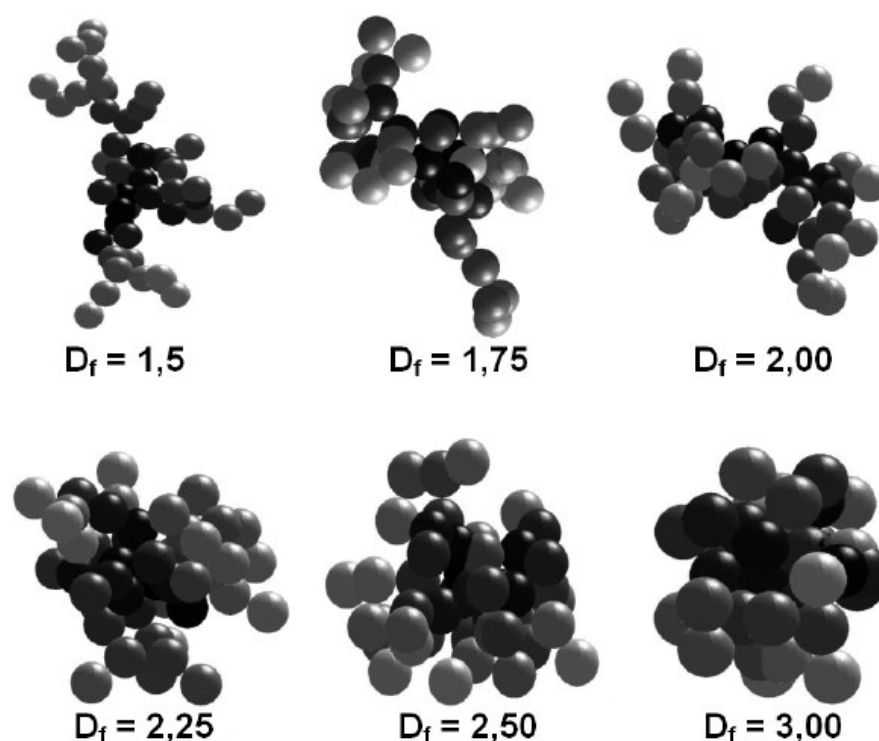


Figure 5 Morphologie d'agrégats de dimensions fractales différentes [Ouf 2006]

Le Tableau 1 ci-après reporte des valeurs de la dimension fractale et du diamètre moyen de particules primaires de suie issues de différentes sources d'émission. Nous pouvons y apprécier la variation de ces paramètres mais ils ne suffisent cependant pas pour identifier les sources d'émission de ces suies. De plus, aucune étude n'ayant été menée sur la détermination de la valeur et de la variation de ces paramètres pour des turboréacteurs d'avion civils, une partie de notre travail visera à combler ce déficit de connaissances.

Auteurs	Méthode	Source d'émission	Diamètre moyen des particules primaires \bar{d}_p (nm)	Nombre de particules primaires mesurées N_{total}	Dimension fractale D_f	Nombre d'agrégats mesurés
[Barone 2006]	MET	aéroport	23 ± 6 à 36 ± 4	4500 à 6000	$1,60 \pm 0,24$ à $1,62 \pm 0,26$	70
[Chandler 2007]	MET	Diesel	20 ± 5 à 29 ± 8	30 à 50	$1,8 \pm 0,1$	100
[Gwaze 2006]	MEB	Bois	$25,5 \pm 3,5$	240	$1,8 \pm 0,1$ à $1,84 \pm 0,05$	205
[Lapuerta 2007]	MET	Diesel	24 ± 13	50		
[Matti Maricq 2004]	ELPI / SMPS	Flamme éthylène prémélangée	16 ± 3 à 26 ± 5	-	$2 \pm 0,1$ à $2,2 \pm 0,1$	-
		Diesel	16 ± 4 à 25 ± 5	-	$2,2 \pm 0,1$ à $2,3 \pm 0,1$	-
[Olfert 2007]	DMA	Diesel catalysé	-	-	$2,22 \pm 0,30$ à $2,76 \pm 0,06$	-
[Ouf 2006]	MET / SMPS / ELPI	Combustion acétylène (gaz)	-	-	$1,93$ à $2,05$	-
		Combustion toluène (liquide)	-	-	$1,81$ à $1,87$	-
		Combustion polymère PMMA (solide)	-	-	$1,72$ à $1,85$	-
[Popovitcheva 2000]	MET	combustor	20 à 50			
[Schneider 2006]	DMA	Bois : hêtre	-	-	$2,09 \pm 0,06$	-
		Diesel	-	-	$2,35 \pm 0,07$	-
		Générateur PALAS	-	-	$2,10 \pm 0,05$	-

		Bois : chêne	-	-	3,06 à 3,09	-
[Smekens 2005]	MET	Diesel	$30 \pm 1,4$	170	-	-
		Biodiesel	$26 \pm 1,4$ à $29 \pm 1,4$		-	-
		Cuisine domestique	$24 \pm 1,3$		-	-
		Avion de chasse	$31 \pm 1,4$		-	-
		Noir de carbone	$30 \pm 0,9$		-	-
[Tian 2006]	MET	Flamme de diffusion laminaire d'éthylène	29	-	$1,770 \pm 0,009$	3415
[Wentzel 2003]	MET	Générateur PALAS	$6,6 \pm 1,7$	690	-	-
		Diesel	$22,6 \pm 6,0$	1938	$1,70 \pm 0,13$	37

Tableau 1 Grandeurs fractales et diamètre moyen de particules primaires de suie issues de la littérature

I.2.3.3. Les distributions en taille

Les distributions en taille mesurées ou établies dans les études publiées dans la littérature suivent une loi log-normale des agrégats [Baron 2001], [Hinds 1999], [Penner 1999]. Dans ce manuscrit, nous définissons cette fonction comme :

$$y = a_0 \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln \frac{d_p}{a_1}}{a_2} \right)^2 \right] \quad (3)$$

avec :

y : pourcentage de particules de diamètre d_p par rapport au nombre de particules total

N_{total}

d_p : diamètre d'une particule élémentaire de suie

a_0 : amplitude/ordonnée du maximum de la fonction

a_1 : abscisse du maximum de la fonction (valeur moyenne géométrique)

a_2 : écart-type de la fonction exprimée

Il est important de garder à l'esprit que la fonction log-normale d'une variable, ici d_p , correspond à la transformation logarithmique de la fonction normale de cette variable [Hinds 1999]. Ainsi, a_2 , l'écart-type de la fonction log-normale, correspond au logarithme de l'écart-type géométrique σ_g associé au diamètre d'une particule élémentaire de suie d_p qui est par définition normalement distribué.

$$a_2 = \ln \sigma_g \quad (4)$$

L'écart-type géométrique σ_g est sans dimension et est supérieur ou égal à 1. Les valeurs de σ_g rencontrées dans la littérature sont reportées dans le Tableau 2 ci-dessous.

Auteurs	Source d'émission	Ecart-type géométrique σ_g
[Petzold 1999]	Avion ATTAS (moteur: M45H Mk501)	1,5 à 1,55
[Pueschel 1995]	Concorde	1,52
[Pueschel 1998]	B757	1,5

Tableau 2 *Ecart-types géométriques σ_g des distributions en taille de particules déterminés pour différents turboréacteurs mentionnés dans la littérature*

II. DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX DE PRODUCTION ET D'ANALYSE

II.1. Les moteurs CFM56

Notre étude est conduite avec des moteurs civils de la famille CFM56, fabriqués conjointement par SNECMA et General Electric dans le cadre de la société CFM. Ces moteurs sont de type turboréacteur à double corps et double flux sans post combustion [Lepourry 1991], [Thevenin 2004] (Figure 6). L'appellation « double corps » signifie que le compresseur est divisé en deux parties successives, basse et haute pression, mues par deux turbines successives à haute (HP) et basse pression (BP). Ce système permet d'obtenir une grande efficacité de fonctionnement. Le terme « double flux » indique que la totalité de l'air admis ne traverse pas entièrement le moteur. Cette technologie est plus économique aux vitesses subsoniques et moins bruyante. Dans ces moteurs, le premier étage du compresseur à basse pression (la soufflante, encore appelée fan) est de grande dimension pour aspirer de grandes quantités d'air. L'air pré-comprimé par la soufflante ne passe pas intégralement par le moteur, mais une partie (le flux froid) le contourne par sa périphérie jusqu'à la tuyère où il est éjecté avec les gaz chauds (flux chaud). La proportion d'air contournant le moteur est variable selon les moteurs. Elle est d'autant plus élevée que le moteur est destiné à voler à des vitesses faibles. Cette proportion est exprimée par le taux de dilution, égal au rapport du flux total massique (flux chaud + flux froid) sur le flux chaud massique.

Ils fonctionnent en utilisant une combustion dite pauvre, c'est-à-dire avec un excès d'air par rapport au carburant.

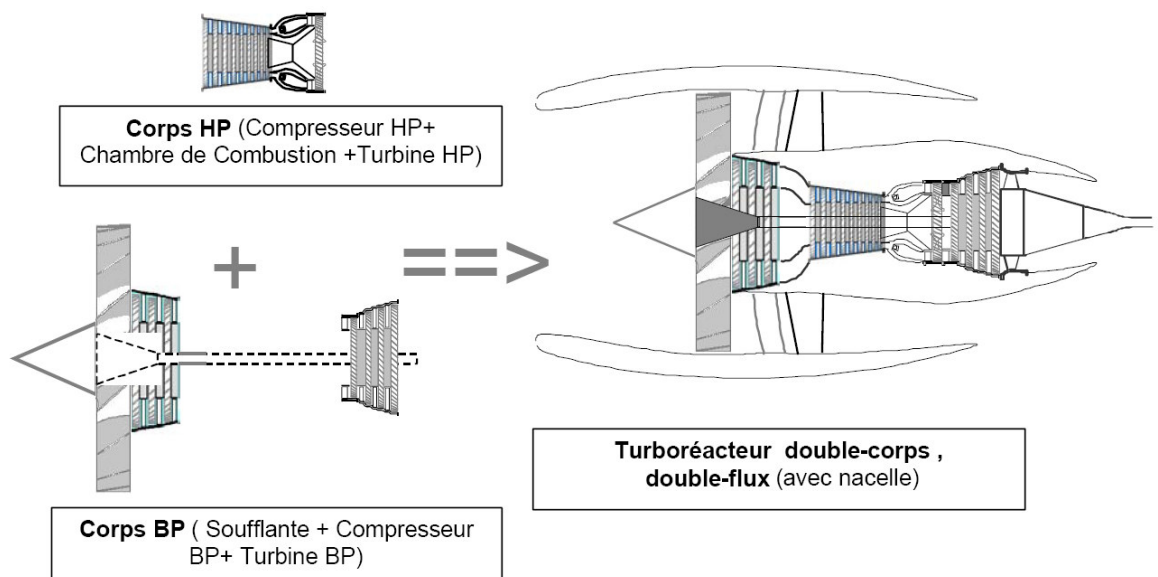


Figure 6 Schéma de principe d'un moteur CFM56 double corps double flux (HP : haute pression ; BP : basse pression) [Thevenin 2004]

Les CFM56 (Figure 7) sont utilisés par les deux plus grands avionneurs mondiaux sur 29 types d'appareils différents. Ils propulsent notamment le Boeing 737 et les Airbus A318, A319, A320, A321 et A340. Il existe six modèles de moteurs couvrant une plage de poussée allant de 18500 à 34000 lbs, et les 15000 moteurs CFM56 actuellement en service (plus de 16000 sont en commande ferme) effectuent un million d'heures de vol tous les dix jours.

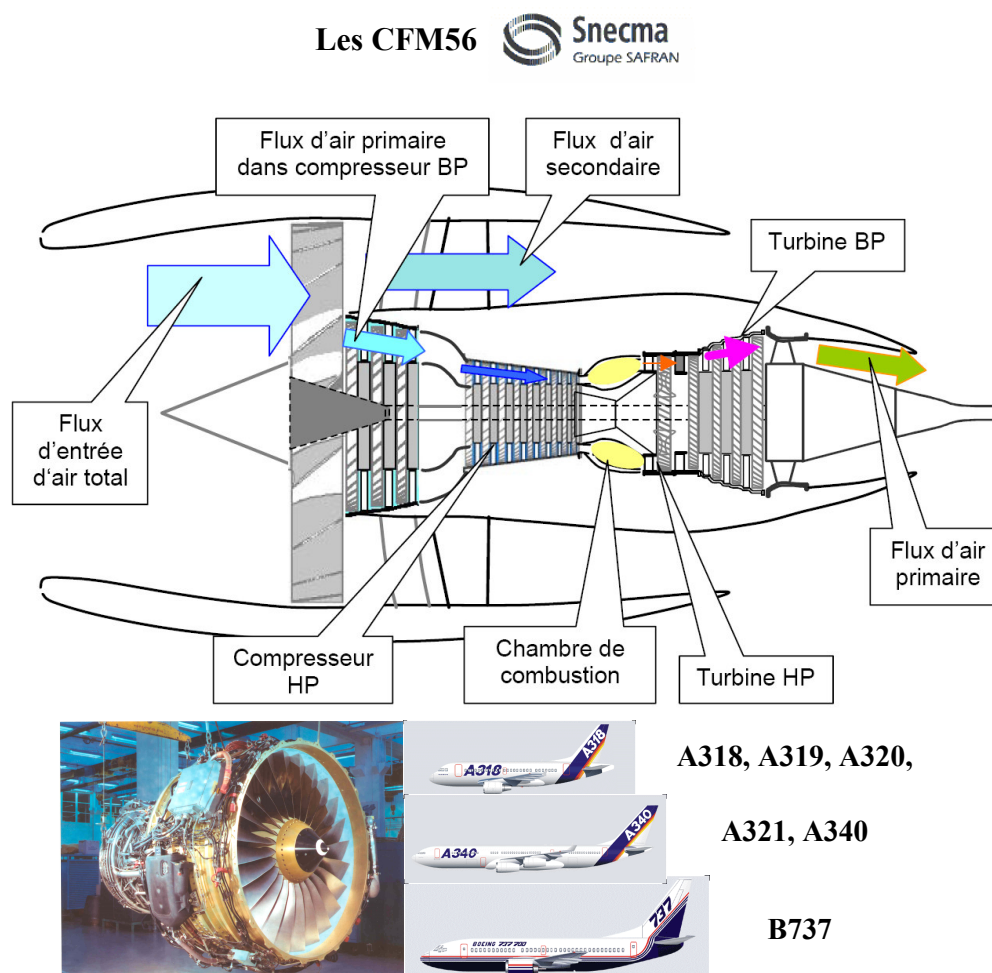


Figure 7 Le CFM56 et ses principales applications [Sneema], [Thevenin 2004]

Type de moteur	Poussée maximum - décollage (lbs)	Taux de dilution	Poussée en croisière (lbs) à 35000ft et M=0,8	Avion type
CFM56-7B27	27300	5,1	5480	B737
CFM56-5B3	33000	5,4	6420	A321
CFM56-5C3	32500	6,5	7585	A340

Tableau 3 Caractéristiques des moteurs CFM56 étudiés

Nous avons travaillé avec des moteurs CFM56-7B27, CFM56-5B3 et CFM56-5C3 alimentés par du carburant de type Jet-A1 (TOTAL-FINA-ELF France, 1100-1200 ppm de soufre) et lubrifiés avec de l'huile pour turbine aéronautique Mobil Jet Oil II (EXXON-

MOBILE). Des différences notables existent entre ces moteurs en terme de poussée et de taux de dilution. Leurs caractéristiques sont reportées dans le Tableau 3.

II.1.1. Le banc d'essai

Nos différentes campagnes de prélèvements se sont déroulées sur un banc d'essai (Figure 8) de la société SNECMA sur le site de Villaroche (77) avec des moteurs identiques à ceux qui sont commercialisés. Le banc se compose de trois pièces : la salle de contrôle (qui ne figure pas sur la Figure 8), la salle contenant le moteur et la salle où les émissions du moteur sont éjectées. Comme cette structure en béton armé dispose de murs d'un mètre d'épaisseur environ, les émissions du moteur sont préservées des interactions avec l'extérieur (effet de dilution...) car leur expansion est limitée au volume de la pièce.

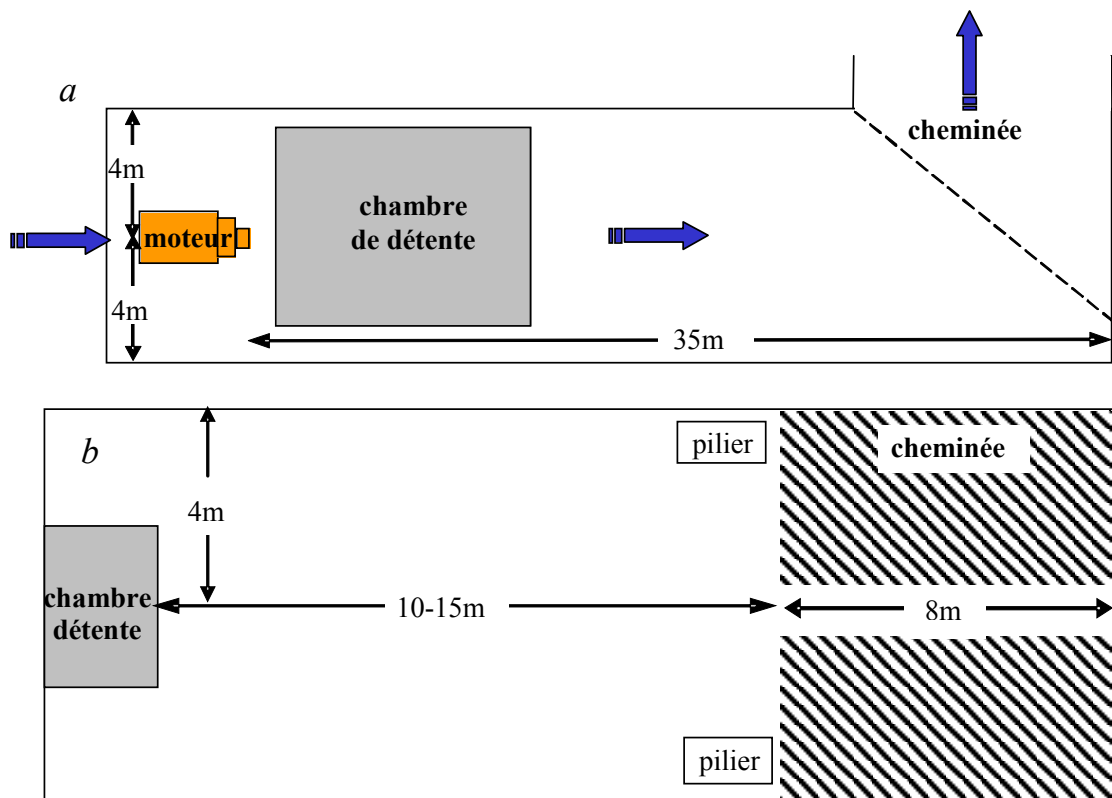


Figure 8 Description du banc d'essai : a) vue de profil du banc, b) vue du dessus du banc

Elles sont directement canalisées dans une chambre de détente qui sert à « casser » la force axiale du flux en le rendant très turbulent (Figure 9). L'expansion du flux « englobe » tout l'espace moins de 1 mètre après la sortie de la chambre de détente. Les gaz et particules émis sont ensuite rejetés à l'extérieur via la cheminée.

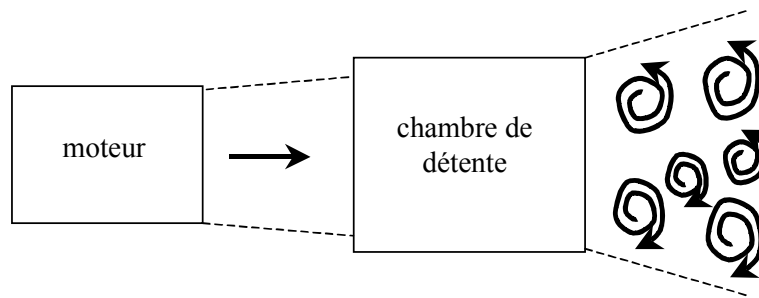


Figure 9 Effet de la chambre de détente du banc d'essai moteur

II.1.2. Les cycles d'essais

L'activité du banc d'essai est avant tout commerciale, c'est pourquoi les prélèvements ont été réalisés lors de séries de cycles moteurs (Figure 10) et non lors de phases spécifiques d'utilisation. Ainsi, les prélèvements sont réalisés sur deux types de séries de cycles :

- des cycles de « vibration » qui ne regroupent pas de phases spécifiques d'application du moteur
- des cycles d'« endurance » qui dans cette étude représentent un roulage, un décollage prolongé, et enfin un atterrissage.

Nos travaux se sont essentiellement concentrés sur les cycles d'endurance car ils sont plus représentatifs de l'activité d'un moteur d'avion. Ils ne correspondent cependant pas aux cycles de la norme établie par l'Organisation Internationale de l'Aviation Civile, (OACI, [International Civil Aviation Organization 1993]) pour la mesure des émissions d'un moteur d'avion. Le Tableau 4 ci-dessous indique la durée totale de chacune des phases du vol reportée dans cette norme.

Phase du vol	Durée totale lors du cycle (minutes)	Poussée relative
Décollage	0,7	1
Montée	2,2	0,85
Approche	4	0,3
Roulage	26	0,07

Tableau 4 Paramètres d'un cycle correspondant à la norme OACI

Dans notre cas, la phase de poussée maximum (correspondant au décollage), est proportionnellement plus importante et les poussées relatives sont différentes. En effet, l'objectif de l'activité menée sur ce banc d'essai est le développement des turboréacteurs et non leur certification.

Lors de notre étude, deux cycles d'endurance différents ont été appliqués aux CFM56-5C (Figure 10a – type I) et CFM56-5B (Figure 10b – type II). Il faut toutefois noter que les cycles de type I ont une durée supérieure de 47 % à aux cycles de type II.

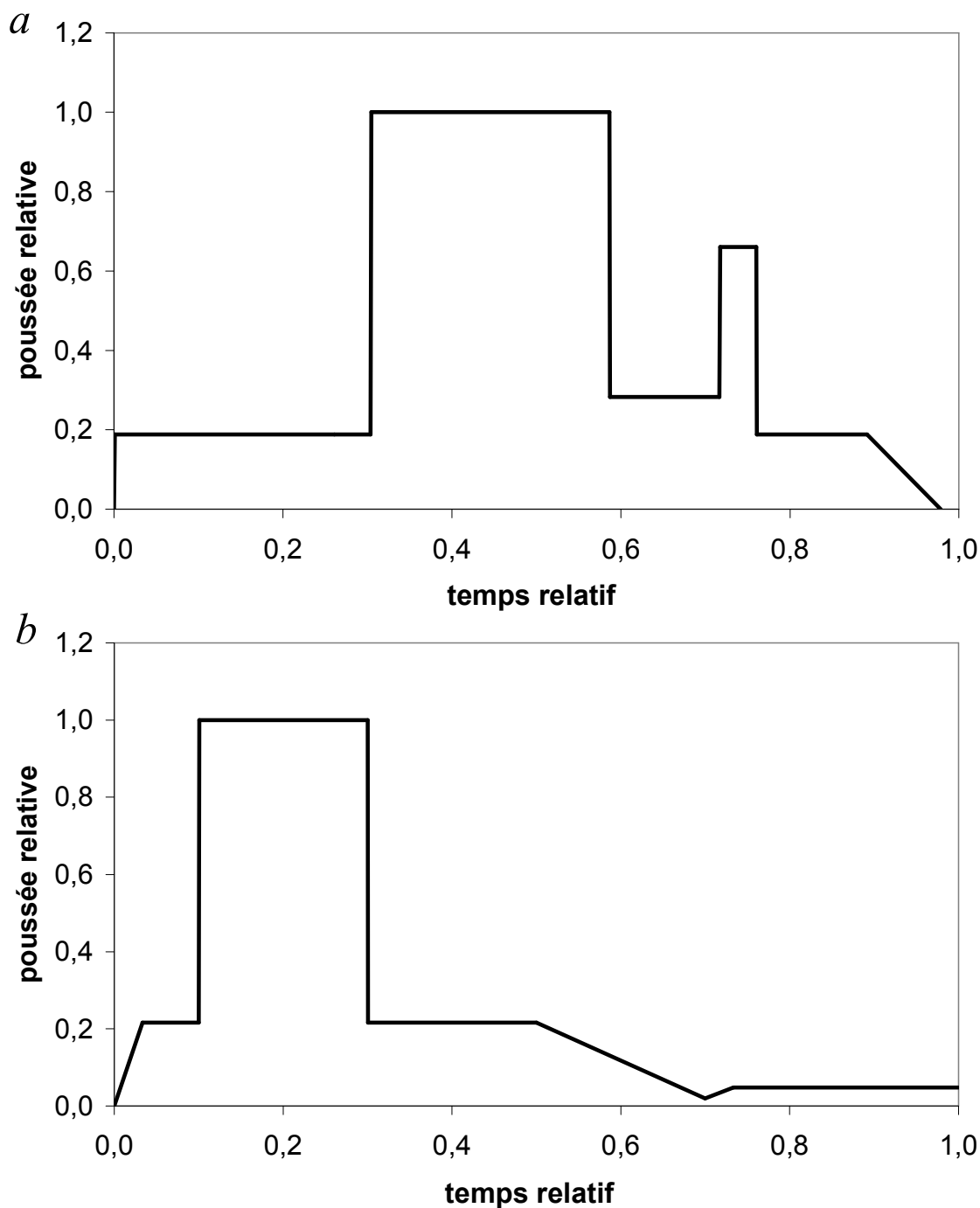


Figure 10 Diagramme des cycles d'endurance réalisé sur le banc d'essai SNECMA lors des différentes campagnes de prélèvement d'échantillon de suie : (a) cycle d'endurance du CFM56-5C (type I) et (b) cycle d'endurance du CFM56-5B (type II)

II.1.3. Mesures sur site

Lors des campagnes de prélèvement d'échantillons de suie, nous avons mis en place un capteur enregistreur de température et d'humidité relative (HOBO® U12 ; Figure 11) sur les second et troisième dispositifs de collecte par impaction (paragraphe III.1.1.1). Plusieurs évolutions du dispositif ont été nécessaires afin de résoudre les problèmes de solidité qui sont apparus. Dans ce paragraphe, seul le capteur combinant la mesure de température et d'humidité relative est décrit.

Ce système simple permet de mesurer des températures comprises entre $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $+70\text{ }^{\circ}\text{C}$ et des humidités relatives comprises entre 5 % et 90 %. Les informations fournies peuvent cependant être légèrement affectées par la présence de certains gaz qui induisent une sur-estimation ou une sous-estimation systématique des mesures d'hygrométrie. De plus, l'utilisation dans des conditions de température hors de la gamme recommandée, et/ou une exposition dans une atmosphère très polluée peuvent aussi entraîner une faible erreur systématique. Cependant, grâce à cet appareillage, nous avons un suivi temporel (toutes les 10 s) des variations de condition ambiante lors de cycles moteurs, mais aussi lors des phase d'arrêt.

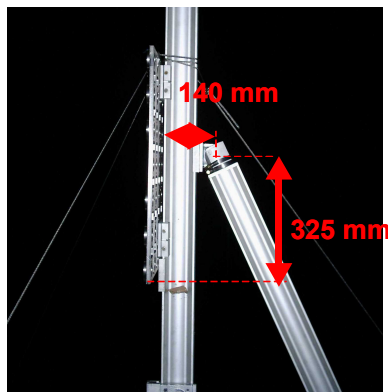


Figure 11 Emplacement du capteur enregistreur de température et d'humidité relative sur le second dispositif

La Figure 12 présente le diagramme du relevé de température et d'humidité relative correspondant à 3 cycles d'endurance de type I et la Figure 13 celui de 3 cycles d'endurance de type II. Les relevés complets pour chacune des campagnes de prélèvements figurent dans l'annexe I.

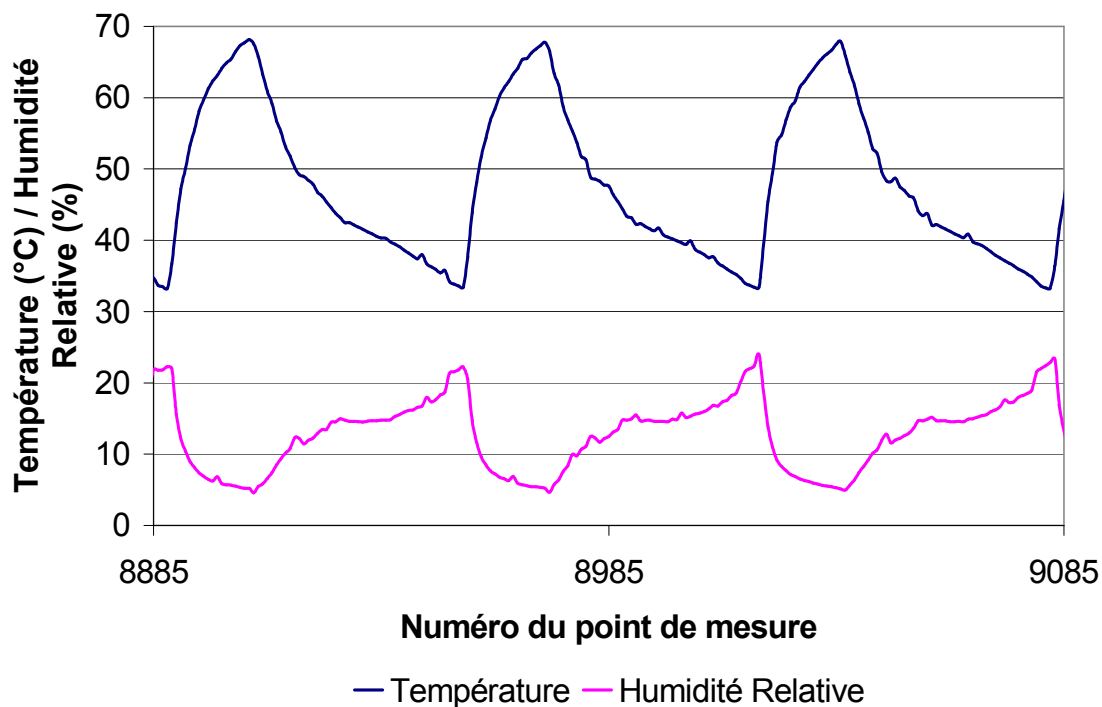


Figure 12 Relevé de température et d'humidité relative pour 3 cycles d'endurance de type I

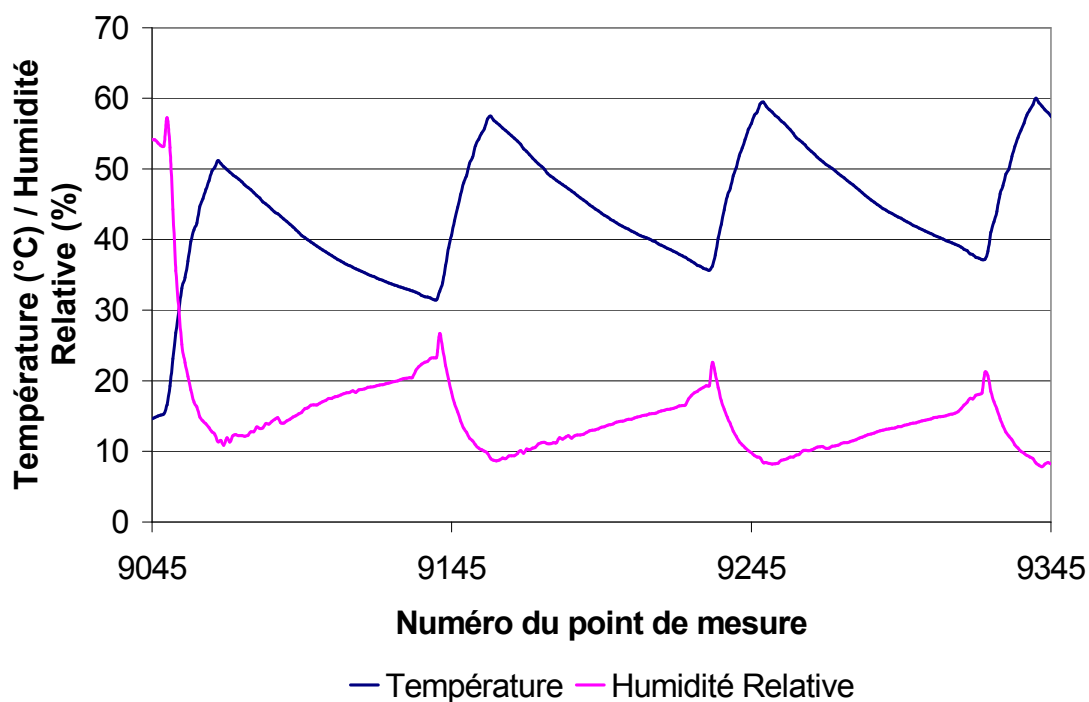


Figure 13 Relevé de température et d'humidité relative pour 3 cycles d'endurance de type II

Des mesures indicatives de pH ont été menées en utilisant des morceaux de papier Duotest® recouverts d'un double réactif couvrant une gamme de pH allant de 1 à 12. Ce type d'indicateur est normalement utilisé pour des mesures en solution aqueuse. Toutefois, sa

simplicité d'emploi nous a conduit à en placer au milieu des supports de collecte afin d'avoir une idée du pH ambiant des émissions. Cette information est importante vis-à-vis des suies, mais aussi de la corrosion du matériel. La Figure 14a montre des morceaux de ce papier pH avant exposition aux émissions du moteur d'avion, et la Figure 14c les montre après 21 cycles d'endurance de type II. Le code couleur permettant l'interprétation du papier pH est indiqué sur la Figure 14b et il montre clairement que le pH a atteint une valeur proche de 2. Notons que ce changement de couleur est apparu rapidement lors de la mise en place du papier sur le dispositif de collecte alors que les émissions gazeuses du cycle précédent étaient encore présentes.



Figure 14 Papier indicateur de pH double réactif avant (a) et après (c) exposition aux émissions d'un moteur d'avion, (b) code couleur pour l'interprétation de ce papier

L'huile moteur, ainsi que le carburant Jet-A1 ont un pH neutre voisin de 7. L'acidité des émissions gazeuses s'explique par le fait qu'elles contiennent des oxydes d'azote, des oxydes de soufre et de l'eau [Wey 2006], [Schumann 1996] qui, en se combinant, forment de l'acide sulfurique H_2SO_4 et de l'acide nitrique HNO_3 [IPCC special report 1999].

II.2. Techniques expérimentales de caractérisation

L'approche de cette étude est différente de celles qui ont été menée sur les suies émises par les moteurs d'avion jusqu'à présent [Wey 2006], [Anderson 2005], [Schumann 1996]. En effet, nous n'avons pas cherché à quantifier les émissions de suie mais à déterminer leurs caractéristiques physiques (diamètre(s), structure,...) et chimiques (composition élémentaire,...). Pour ce faire, nous avons mené des études par microscopie électronique à balayage et en transmission, spectrométrie de rayon X, spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR), et chromatographie couplée à la spectrométrie de masse.

II.2.1. Microscopie électronique

II.2.1.1. Microscopie électronique à balayage : MEB

La microscopie électronique à balayage, dont le principe est illustré sur la Figure 15, est une méthode expérimentale d'observation directe des aérosols de taille nanométrique.

Un faisceau d'électrons balaie la surface de l'échantillon qui génère en retour des électrons secondaires et rétrodiffusés, de basse énergie qui sont accélérés vers un détecteur d'électrons. A chaque point d'impact correspond alors un courant électrique dont l'intensité dépend de la nature de l'échantillon émetteur d'électrons. L'enregistrement simultané de ces électrons permet la formation d'une image représentative de la topographie de surface de l'échantillon (électrons secondaires) et de la répartition des éléments (contraste de profondeur, avec les électrons rétrodiffusés). Il est ainsi possible, en balayant l'échantillon avec le faisceau, d'obtenir une cartographie de la zone balayée.

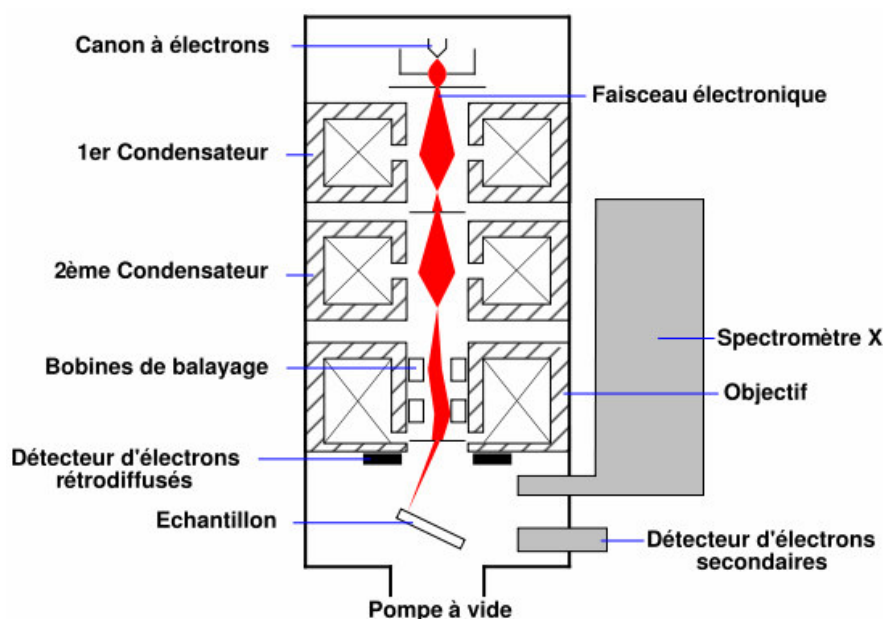


Figure 15 Microscope électronique à balayage

Nous avons utilisé un microscope électronique à balayage JEOL JSM-6320F dont la tension d'accélération de travail est comprise entre 0,5 et 30 kV avec des résolutions de 1,2 nm à 15 kV et 2,5 nm à 1 kV. Ce microscope permet d'atteindre des grossissements égaux à 650 000 en mode haute résolution. L'observation des échantillons est réalisée en plaçant le support de collecte (des membranes en polycarbonate) comportant de la suie sous le faisceau d'électrons.

II.2.1.2. Microscopie électronique en transmission : MET

La microscopie électronique en transmission permet également l'observation de particules de taille nanométrique. Elle offre la possibilité d'étudier les objets dans l'espace direct, et

dans l'espace réciproque par diffraction des électrons. Des informations précises sur la morphologie, la structure et les paramètres cristallographiques peuvent donc être obtenues en combinant ces différents modes d'observation sur un même échantillon. A la différence de la microscopie électronique à balayage, le faisceau d'électron est plus énergétique et le principe est basé sur la physique des processus d'interaction élastique entre les électrons incidents et les atomes « cibles » de l'échantillon. Les électrons traversent l'échantillon avant d'impacter une surface fluorescente qui crée l'image transmise.

Nous travaillons avec un microscope JEOL JEM 2000FX qui a une résolution de 1,8 Å à 200 kV et des valeurs du grandissement comprises entre 1 000 et 1 000 000. Les plus forts grandissements permettent donc d'observer la structure atomique des échantillons préalablement déposés sur des grilles adaptées.

II.2.2. Spectrométrie dispersive d'énergie de rayons X : EDX

Les microscopes électroniques utilisés au cours de ce travail sont équipés d'un système de microanalyse X (TRACOR Serie II). Cette technique de spectrométrie dispersive d'énergie de rayon X permet de déterminer la composition chimique élémentaire des échantillons en une zone donnée. Son principe [Hawkes 2006] repose sur la détection des photons X émis lors de la désexcitation des atomes de l'échantillon préalablement ionisés par le faisceau électronique du microscope. Les énergies des photons X étant caractéristiques des niveaux de transitions électroniques des atomes émetteurs, il est alors possible d'identifier la nature des espèces atomiques présentes dans l'échantillon. Cette technique permet également d'analyser quantitativement les éléments chimiques de numéro atomique supérieur ou égal à $Z = 6$ (carbone) lorsqu'ils sont présents. Dans notre cas, elle est couplée au microscope électronique, ce qui nous permet de réaliser in-situ la microanalyse chimique sur les échantillons observés par MET.

II.2.3. Spectroscopie InfraRouge à Transformée de Fourier : FTIR

La spectroscopie infrarouge est une technique d'identification et de quantification de la composition chimique d'un échantillon. Elle est non-destructive pour l'échantillon, et basée sur l'étude de l'absorption (ou de la transmission) par ce dernier des radiations électromagnétiques comprises entre $10\,000\text{ cm}^{-1}$ et 10 cm^{-1} . Cette bande spectrale est elle-même divisée en région usuellement désignées comme l'infrarouge proche (de $10\,000\text{ cm}^{-1}$ à $4\,000\text{ cm}^{-1}$), l'infrarouge moyen ($4\,000\text{ cm}^{-1}$ à 400 cm^{-1}) et infrarouge lointain en-deçà. La région spectrale la plus riche en informations et la plus utilisée d'un point de vue expérimental est l'infrarouge moyen. Les absorptions dans ce domaine constituent une « empreinte digitale » qualitative des composés permettant de les identifier et d'en déduire des informations sur leur structure moléculaire. Il est ainsi possible d'identifier les groupements chimiques pouvant se trouver à la surface d'un échantillon. Nous utilisons dans ce travail un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (BRUKER, modèle Equinox 55) équipé d'un détecteur DTGS (Deuterated Tri Glycine Sulfate) permettant l'étude spectroscopique des échantillons entre $8\,000$ et 400 cm^{-1} .

II.2.4. Chromatographie

La chromatographie est une technique permettant de séparer et de quantifier une (des) espèce(s) moléculaire(s) présente(s) dans un échantillon. Son principe repose sur la vitesse de diffusion d'un composé à travers une colonne remplie de deux phases non miscibles, l'une stationnaire (emprisonnée dans la colonne) et l'autre, mobile. Les différences d'interaction conduisent à des différences de vitesses lors de l'entraînement par la phase mobile et donc à une séparation.

Les analyses chromatographiques présentées dans ce mémoire sont réalisées sur nos échantillons par des équipes avec qui nous collaborons. Les échantillons collectés derrière les moteurs sont traités par le Centre de Recherche en Chimie Moléculaire (CRCM) dans le cadre du programme Primequal 2 [Ruiz 2006] d'une part, et la validation des cellules de stockage est réalisée par le Département Énergétique Fondamentale et Appliquée (DEFA) de l'ONERA dans le cadre du programme Comité Avion et ATmosphère [Ruiz 2007] d'autre part. L'équipe du CRCM utilise un chromatographe en phase gazeuse HP 6890© (Agilent Technology, USA) équipé d'un injecteur splitless et d'une colonne HP5-MS® (Agilent Technology, USA). Le gaz vecteur est l'hélium et le détecteur est un spectromètre de masse MSD 5973© (Agilent Technology, USA).

Le DEFA utilise une chaîne d'analyse Prostar© (Varian, USA) constituée d'un passeur automatique d'échantillons, d'un système de gradient (eau/acétonitrile) contrôlé par deux pompes, d'une colonne analytique Microsorb® (Interchrom, France), et d'un détecteur ultraviolet à barrettes de diodes.

Notons qu'avant de réaliser les analyses il y a, dans les deux cas, extraction des molécules d'intérêt grâce à des solvants à partir de filtres sur lesquels de la suie a été collectée.

II.2.5. Spectrométrie de masse : MS

La spectrométrie de masse est une méthode destructive d'analyse de la composition chimique moléculaire et atomique d'une phase gazeuse. Elle repose sur la détermination des masses des espèces atomiques ou moléculaires individuelles de l'échantillon analysé :

- 1 – ionisation : l'espèce étudiée est ionisée dans la chambre d'ionisation de l'appareil. A ce stade, tout composé formé de molécules conduit à un mélange statique d'ions de fragmentation.
- 2 – accélération : sitôt formés, les ions sont extraits de la chambre d'ionisation, accélérés et focalisés par des lentilles électrostatiques, ce qui accroît leur énergie cinétique.
- 3 – séparation : les ions sont filtrés par l'analyseur suivant leur rapport masse sur charge.
- 4 – détection : après séparation les ions terminent leur trajectoire sur un détecteur qui quantifie les charges électriques. Le traitement du signal de sortie de l'appareil conduit au spectre de masse du composé.

Dans notre cas, la spectrométrie de masse est associée à la chromatographie dans un rôle de détecteur.

Le spectromètre de masse MSD 5973© (Agilent Technology, USA) utilisé par le CRCM opère en mode de sélection d'ions (SIM).

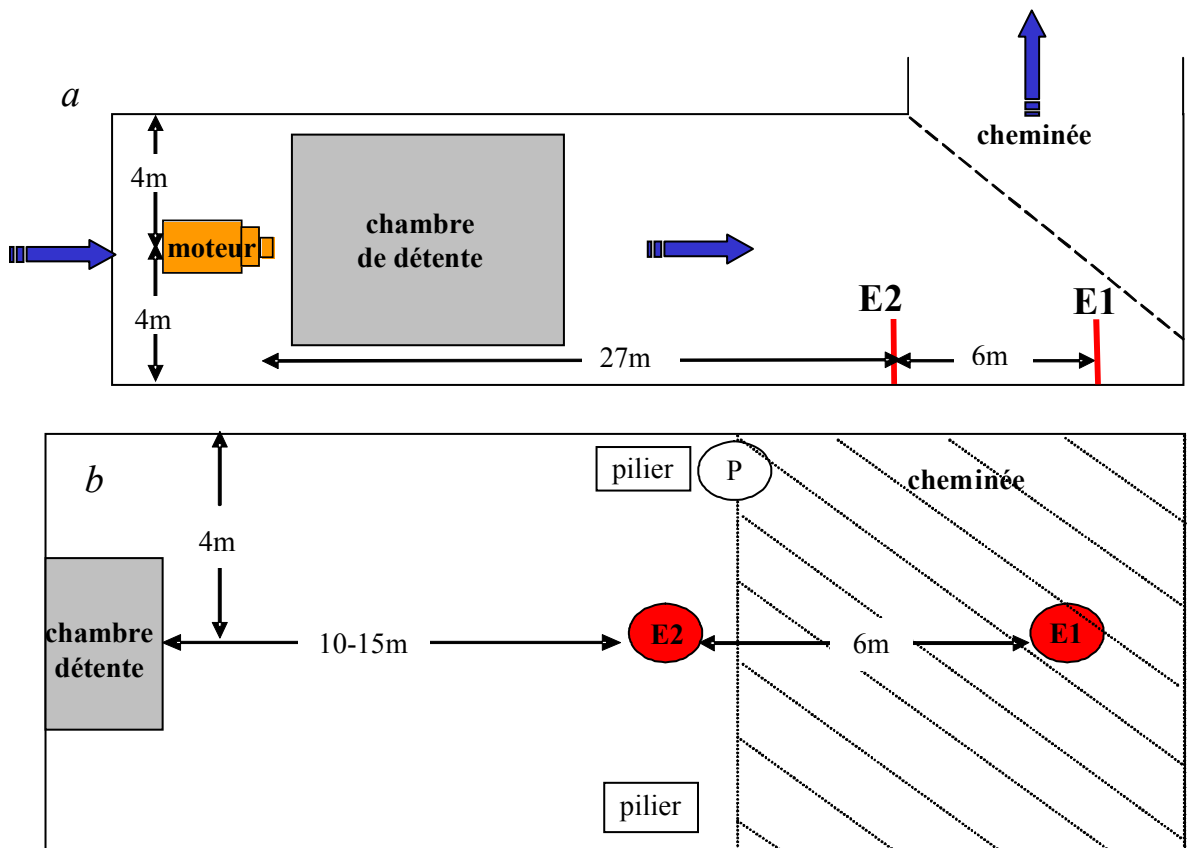
III. PRÉLÈVEMENTS DE PARTICULES DE SUIE ÉMISES PAR UN TURBORÉACTEUR D'AVION

III.1. Méthodes de prélèvement

Réaliser des prélèvements de particules derrière un moteur d'avion n'est pas aisé car la température du flux en sortie du moteur est comprise entre 270 et 320 °C et sa vitesse de 480 m.s⁻¹. Sur le banc d'essai, ce flux ressort affaibli de la chambre de détente et sa température est comprise entre 65 et 80 °C à 27 m du moteur.

Deux types de dispositifs de prélèvement ont été envisagés :

- un système passif où les particules de suie vont impacter un support appelé dispositif par impaction.
- un système plus « classique » de prélèvement par pompage. Leurs différents emplacements lors des essais sont indiqués sur la Figure 16.



P : pompage – E1 : 1er emplacement du mât – E2 2ème emplacement du mât

Figure 16 Description du banc d'essai : a) vue de profil du banc, b) vue du dessus du banc

Nos dispositifs sont localisés dans la salle des émissions moteur. L'emplacement « E1 » correspond à la première campagne de mesure menée avec le dispositif d'impaction. Cependant l'efficacité de la cheminée d'évacuation est telle que nous avons dû déplacer notre appareillage en « E2 » pour la suite des campagnes. Cette translation de 6 m sert à placer le

dispositif en amont de cette cheminée, tout en n'étant pas trop près du moteur. L'emplacement « P » indique l'endroit où le dispositif de pompage a été placé. Mettre le matériel derrière un pilier permet de mieux protéger et de fixer la tête de prélèvement à la même hauteur que les supports du dispositif d'impaction ($> 1 \text{ m } 30$).

III.1.1. Prélèvement par impaction

III.1.1.1. Le dispositif

Le principe du dispositif de prélèvement par impaction est simple : des supports d'échantillon de différentes natures sont placés perpendiculairement à l'axe du flux, mais au-dessous de celui-ci. Le choix de la hauteur où sont collectés les échantillons résulte d'un compromis entre les contraintes mécaniques et commerciales, et la volonté d'être au plus près du centre du flux. A 4 m du sol, les contraintes mécaniques sont les plus importantes et cette hauteur implique une structure « lourde ». De plus, le dispositif serait directement exposé au flux car à ce niveau, l'action de la chambre de détente est limitée. Le second point, prédominant dans nos choix, est lié à l'activité commerciale du banc d'essai. En effet, la mise en place et le démontage des supports de collecte sur le dispositif (Figure 18 et Figure 19) doivent s'opérer en un minimum de temps afin de limiter des retards liés aux temps d'intervention sur l'installation. C'est pourquoi, nous avons choisi de placer les supports à une hauteur de 2 m au maximum. Le dispositif (Figure 17) permet de fixer jusqu'à 48 surfaces de collection de 47 mm de diamètre, et de 2 mm d'épaisseur au maximum. Il est composé d'un mât en aluminium, d'une plaque, et d'éléments de serrage en acier inoxydable. Il est fixé au sol par 3 élingues (non présentes sur la Figure 18) et 6 chevilles à béton de 8mm de diamètre.



Figure 17 Plaque pour support et fixation



Figure 18 Dispositif n°1 de prélèvement passif

la structure tripode s'est révélée satisfaisante, en terme de résistance mécanique, au niveau du premier emplacement E1 (cf. § précédent). Mais, une fois mis à l'emplacement E2, elle ne s'est pas révélée suffisamment solide pour résister à des essais d'endurance du moteur CFM56-5C, ce qui nous a conduit à la revoir complètement. Notons que ce moteur est le plus puissant de la gamme CFM56 et que les contraintes sont maximales pour les essais d'endurance. La structure du mât tripode en aluminium a donc été remplacée par un mât en barres X95® en « L » avec un socle pour mieux répartir les efforts mécaniques (Figure 19). La plaque de fixation des supports a cependant été conservée. Les structures X95® sont des éléments passivés chimiquement, ce qui est préférable dans notre cas (cf. § II.1.3).

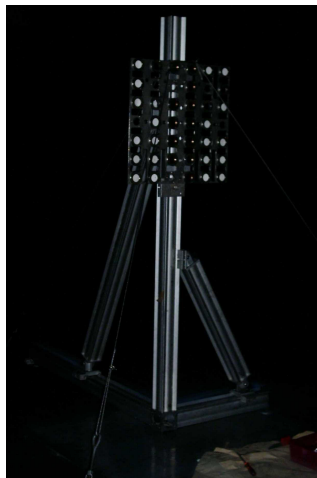


Figure 19 Dispositif n°2 de prélèvement passif

Ce second dispositif a donné satisfaction sur plusieurs jours d'exposition aux émissions mais il s'est avéré insuffisamment robuste sur une longue durée puisqu'une rupture au niveau du cube de jonction a été constatée au bout de plusieurs mois de présence dans la veine d'écoulement du banc d'essai. Des renforts ont donc été ajoutés, rendant inutile l'utilisation d'élingues (Figure 20).

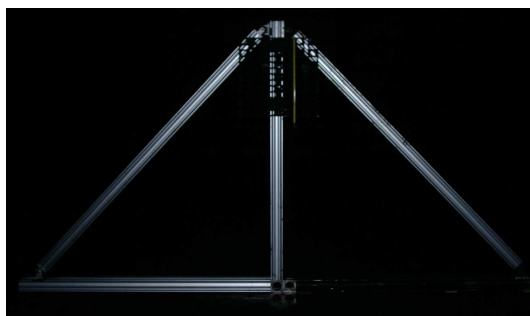


Figure 20 Dispositif n°3 de prélèvement passif

Au bilan, il aura donc fallu réaliser cinq campagnes de collecte pour réaliser une structure qui *i)* soit suffisamment résistante aux différentes contraintes mécaniques et *ii)* permette d'obtenir des échantillons exploitables en quantité suffisante pour effectuer nos caractérisations physico-chimiques.

III.1.1.2. Les supports

L'ensemble des caractéristiques physico-chimiques des particules de suie émises par un moteur d'avion ne peuvent être déterminées qu'en utilisant diverses techniques expérimentales. Les différents supports utilisés répondent aux exigences des techniques que nous avons présentées (§ I.2.) et des données que nous souhaitons mesurer et/ou déterminer [§ III.1.2.], [Baron 2001]. Nous avons également tenu compte, dans le choix de nos supports (Tableau 5), des standards employés dans les mesures d'émissions automobiles [Brasseur 1999] et dans les mesures de qualité de l'air [Brink 2004], [Hitzenberger 2004] afin de pouvoir effectuer des comparaisons avec les données issues de ces travaux.

Des surfaces métalliques de cuivre, ou d'aluminium, constituent le premier type de support choisi pour collecter des particules de suie qui pourront être récupérées par brossage ou par lavage par un solvant. Il est à noter que les feuilles d'aluminium peuvent aussi faire l'objet d'extraction en vue d'analyses chimiques. Cependant, nous avons utilisé deux types de filtres spécialement dédiés (l'un en fibres de verre et l'autre en quartz, de marque Whatmann) pour réaliser ces analyses chimiques avec l'étape d'extraction. Des microgrilles spécifiques (Holey Carbon Film, AGAR Scientific) sont utilisées pour les analyses MET, tandis que des membranes en polycarbonate (Nucléopore®/Isopore, Millipore) de porosité 0,22 et 0,40 μm , sont utilisées pour les analyses MEB. Enfin, des fenêtres en silicium et en germanium permettent de réaliser des analyses vibrationnelles par FTIR en transmission.

Support	Matière	Application(s)
Disque	Cuivre	Collection de matière brute
Feuille	Aluminium	Collection de matière brute
Filtre GF/F	Fibres de verre	Extractions et analyses chimiques
Filtre QF	Quartz	Extractions et analyses chimiques
Membrane Nucléopore®Isopore	Polycarbonate	Microscopie (MEB)
Grilles MET	Cuivre et carbone	Microscopie (MET)
Fenêtres infrarouge	Silicium ou Germanium	Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier

Tableau 5 Supports de collecte et leurs applications

III.1.2. Prélèvement par filtration et par brosse

Le prélèvement par pompage est la méthode la plus communément utilisée pour l'étude des aérosols [Hitzenberger 2004]. Ce moyen de prélèvement (Figure 21) a été mis en place dans le cadre du programme national PRIMEQUAL 2 par le Laboratoire Inter-universitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA, Créteil) et l'Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques (INERIS). Les prélèvements ne sont pas réalisés de manière isocinétique mais avec deux pompes de capacités différentes. L'une de capacité moyenne, 30 l.min⁻¹ (LISA), et l'autre de faible capacité, 5-6 l.min⁻¹ (INERIS). Les supports de collection sont des membranes Nucléopore®Isopore.

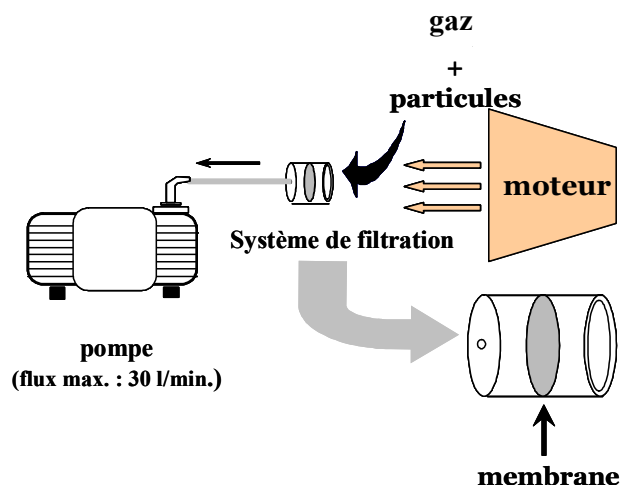


Figure 21 Dispositif de prélèvement par pompage utilisé dans le cadre de PRIMEQUAL 2 par le Laboratoire Inter-universitaire des Systèmes Atmosphériques

Prélever de la suie par brosse est la méthode la plus simple. Elle consiste à récolter la suie accumulée sur une surface par brosse à l'aide d'un pinceau.

III.2. *Choix de la méthode de prélèvement utilisée*

Nous avons collecté des échantillons de suie sur des membranes en polycarbonate Nucléopore®Isopore avec chacune des trois méthodes préalablement décrites. Ces échantillons ont ensuite été analysés par microscopie électronique à balayage et comparés entre eux pour déterminer la méthode la plus adaptée aux prélèvements derrière un moteur d'avion.

III.2.1. Le pompage

Les premiers prélèvements par pompage se sont révélés difficiles à mettre en place en raison de la fragilité du matériel qui a limité le nombre d'emplacements possible (Figure 16). Toutefois, un dispositif a pu être mis en place et fournir des échantillons. Sur les membranes obtenues, nous observons (Figure 22) de gros amas de suie localisés autour et dans les pores. Cette « sur-agglomération » artificielle semble résulter du processus de pompage au travers de la membrane puisque l'essentiel des agrégats se trouvent à proximité ou dans les pores. Ce phénomène rend très difficile les études de morphologie, de structure et de distributions en taille d'agrégats et de particules primaires. De surcroît, pour éviter tout biais de prélèvement, il est préférable de réaliser un pompage isocinétique [Brockmann 2001] qu'il nous est impossible de réaliser. En effet, l'activité d'essai du moteur est basée sur des cycles (§ III.1.1.2) qui engendrent des variations multiples et rapides de débit d'air lors du prélèvement et il ne nous a pas été possible d'asservir le dispositif de prélèvement par pompage au système de contrôle du banc d'essai. Une solution aurait pu être la mise en place d'un système permettant d'agir sur le débit de pompage à distance mais la configuration de l'installation d'essai et des contraintes liées à la sécurité, n'a pas permis sa mise en œuvre.

Enfin, il faut également prendre en considération le fait que le prélèvement de particules par pompage est un phénomène complexe comme l'attestent plusieurs études qui ont fait apparaître des phénomènes physiques conduisant à une différence dans la captation suivant le diamètre des particules [Baron 2001]. Tous ces éléments, ajoutés à la comparaison avec les autres méthodes mises en œuvre, nous ont conduit à ne pas poursuivre la collecte d'échantillons de suie par pompage.

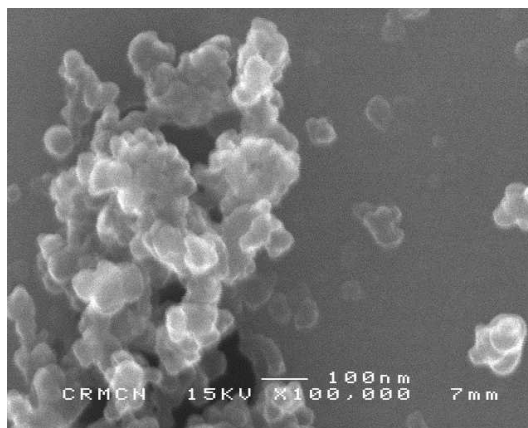


Figure 22 Echantillon de suie prélevé par pompage et observé par MEB

III.2.2. Le brossage

Les échantillons de suie collectés par brossage d'une surface de cuivre puis dépôt sur une membrane présentent des agrégats de taille extrêmement importantes, compacts, et difformes. Ils ne sont pas uniformément répartis sur toute la surface de la membrane (Figure 23) et leur localisation sur la surface résulte de la combinaison entre l'effet mécanique du brossage et le dépôt des particules sur la membrane. Cette méthode de prélèvement, comme la précédente, conduit à une agrégation artificielle des particules et ne permet pas l'étude structurale d'échantillons de suie représentatifs de l'émission d'un moteur d'avion. Nous avons donc décidé de ne pas l'utiliser dans la suite de nos travaux.



Figure 23 Echantillon de suie prélevé par brossage et observé par MEB

III.2.3. L'impaction

A la différence des deux méthodes précédentes, la collecte par impaction (Figure 24) conduit à des échantillons de suie présentant de petits agrégats (de quelques particules primaires à quelques dizaines) aléatoirement répartis sur la surface et non pas exclusivement localisés dans et à proximité des pores des membranes Nucléopore®/Isopore. Ces agrégats semblent donc être représentatifs de l'émission des moteurs dans la mesure où nous n'observons pas de particules de très grande taille qui résulterait de l'agglomération de ces petits agrégats et leur répartition homogène suggère qu'il n'y a pas d'effet d'aspiration ou de filtration par les pores des membranes. Par la suite, nous utiliserons exclusivement cette méthode de collection de suie sur nos différents supports (membranes, fenêtres infrarouges, grilles de MET,...). Il faut toutefois noter que le processus mis en jeu dans la captation de ces particules pour obtenir nos échantillons ne nous est pas connu car les modèles de mécanique des fluides ne sont pas conçus pour prendre en compte des particules de taille nanométriques (où la physique statistique collisionnelle s'applique du fait de la taille des particules qui est du même ordre de grandeur que celles des molécules de gaz qui les environnent). Il est cependant intéressant de constater que des prélèvements ont pu être effectués sur des supports poreux et d'autres non-poreux, d'où l'appellation dans ce mémoire de « processus par impaction ».

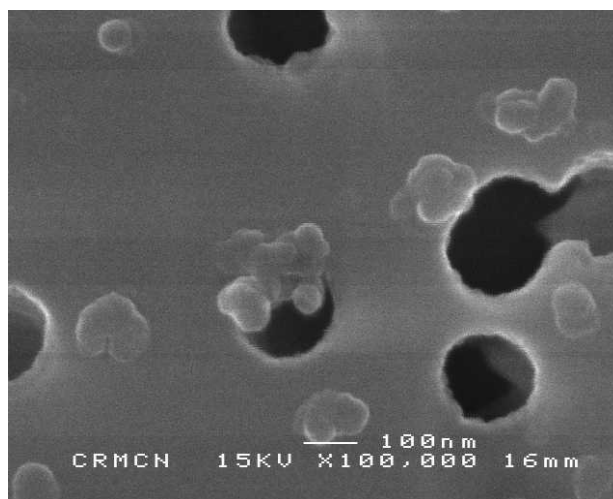


Figure 24 Echantillon de suie prélevé par impaction et observé par MEB

III.3. Développement d'un support de prélèvement : cellule FTIR/MET

La conception d'un support pour collecter les particules de suie doit répondre à un certain nombre de contraintes liées soit à l'exploitation du banc par SNECMA dans son activité commerciale, soit aux techniques de caractérisation expérimentale utilisées à la suite du prélèvement. Ceci nous a donc défini un cahier des charges qui implique la mise au point d'un support :

- simple et rapide à mettre en place car les périodes d'arrêts des moteurs et les délais d'intervention sur le dispositif de collecte sont très courts.
- autonome dans son fonctionnement car nous n'étions autorisés à utiliser ni électricité, ni fluide, ni gaz.
- permettant l'étude d'un même échantillon par des techniques de caractérisation complémentaires.
- capable de résister aux contraintes thermiques et mécaniques générées par le flux des moteurs lors des cycles de travail (§ III.1.2.).

Les premiers essais de faisabilité ont très vite fait apparaître que les quantités d'échantillon collectées sont faibles. L'utilisation de grilles de microscopie électronique en transmission en cuivre d'une part, et de fenêtres infrarouge en silicium d'autre part, se sont imposés rapidement car les techniques MET et FTIR ne nécessitent que très peu de matière pour réaliser des études. Les grilles de microscopie sont mécaniquement fragiles alors que les fenêtres sont mécaniquement et thermiquement résistantes. Il a donc fallu construire un ensemble spécifique (Figure 25) permettant d'intégrer ces deux supports sachant qu'il existe de nombreux types de grilles MET et de fenêtres pouvant servir aux mesures infrarouges. Nous avons testé deux types de grilles et deux types de fenêtres. Les grilles de MET sont constituées d'un maillage de mèches, en cuivre, recouvert d'un film de carbone amorphe de plusieurs dizaines de nanomètres d'épaisseur. Le film de carbone est plein pour les grilles « carbon film » tandis qu'il est troué pour les grilles « holey carbon film ». L'étude des échantillons a permis de mettre en évidence que les grilles de microscopie MET les plus adaptées à la collecte de suie de moteur d'avion n'étaient pas les grilles « carbon film », dont

le revêtement se détruit lors du prélèvement, mais plutôt les grilles « holey carbon film ». Concernant les mesures de spectroscopie infrarouge, nous avons utilisé des fenêtres en silicium et en germanium pour leur qualité de transmission optique dans l'infrarouge moyen, leurs propriétés mécaniques, et leur inertie chimique.

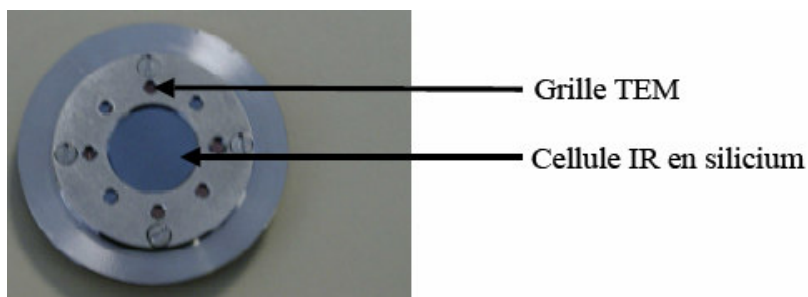


Figure 25 Support FTIR/MET

III.4. Conditionnement du matériel

Afin de garantir l'intégrité des échantillons collectés lors de la collecte de celui-ci et après lors de son stockage, un soin tout particulier a été apporté au conditionnement du matériel. Les filtres sont pré-nettoyés aux ultra-sons dans du dichlorométhane (grade HPLC) afin de « décrocher » les impuretés résiduelles. Le temps de sonification est compris entre 30 minutes et 1 heure. Les filtres sont alors séchés sous une hotte à flux laminaire (classe 10). Ils sont ensuite conditionnés dans des boîtes « Pétriside » qui ont préalablement subi un cycle de lavage. Les boîtes sont d'abord plongées dans un bain de Décon® (détergent concentré, Prolabo) à 2 % (détergent concentré + eau permutée). Cette étape permet d'éliminer les métaux, les ions et toute matière organique en milieu basique. Après 24 heures de trempage, le tout est rincé abondamment à l'eau permutée puis plongé pendant 24 heures dans un bain d'acide chlorhydrique à 2 % (acide chlorhydrique Normapur© + eau permutée) afin d'éliminer les ions et le Décon® restant en milieu acide. Les boîtes sont à nouveau rincées abondamment à l'eau permutée puis mises à sécher sous la hotte à flux laminaire. L'ensemble des pinces, pinceaux et autres contenants subissent le même cycle de lavages. En ce qui concerne les disques de cuivre, ils sont nettoyés à l'éthanol 99 %.

IV. CARACTÉRISATION EXPÉRIMENTALE DES PROPRIÉTÉS PHYSICO-CHIMIQUES DES SUIES

IV.1. Etude des suies émises par un CFM56-5C

IV.1.1. Caractérisation physique

IV.1.1.1. Morphologie et structure

Les prélèvements ont permis la collecte de particules sur des membranes en polycarbonate et des grilles de microscopie électronique. Les agrégats et particules déposés sur ces supports ont été étudiés par microscopie électronique à balayage (MEB) et microscopie électronique en transmission (MET). Nous présentons ci-dessous quelques clichés illustrant les morphologies observées :

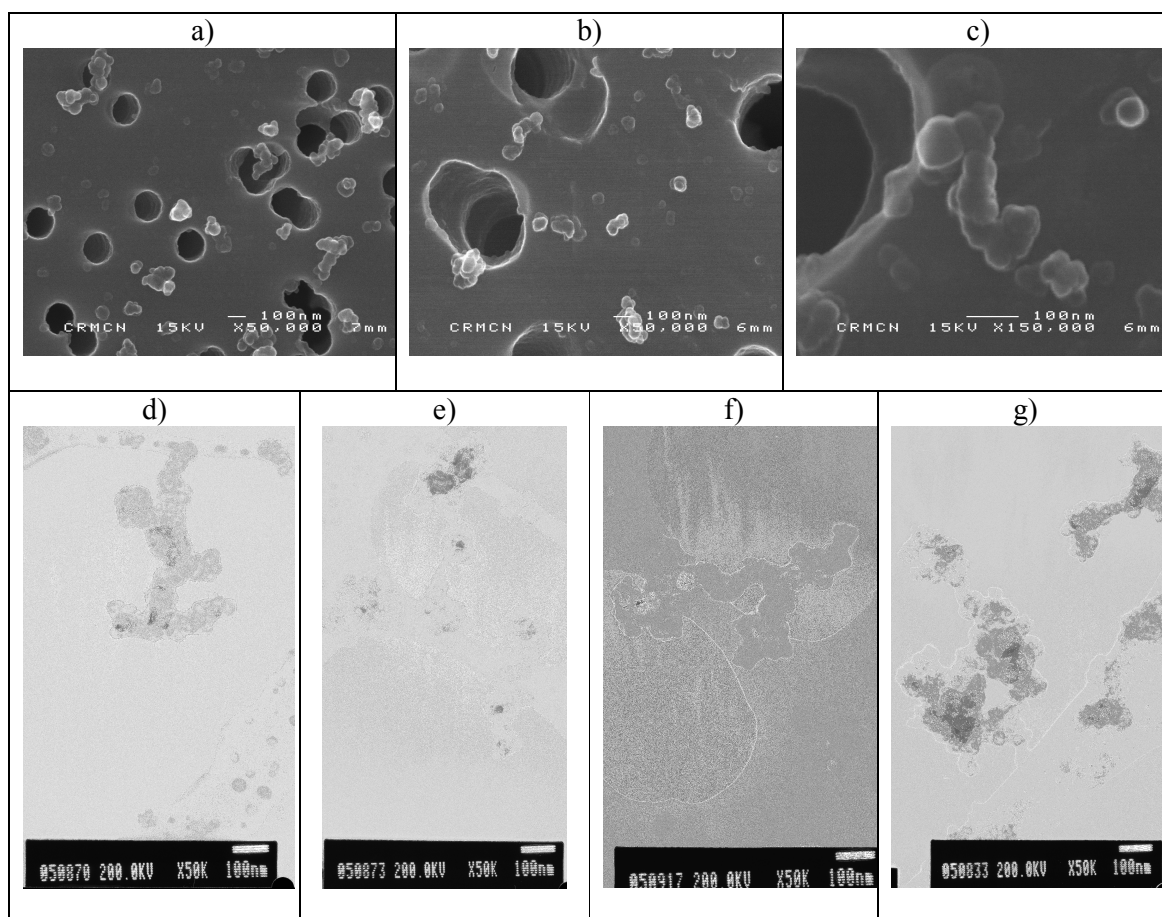


Figure 26 agrégats de suie émis par un turboréacteur CFM56-5C et observés en MEB (a, b, c) et MET (d, e, f, g)

L'ensemble des images obtenues par microscopie électronique met en évidence une morphologie sphérique des particules primaires de suie (Figure 24, Figure 26 et Figure 27a). Sur la totalité des clichés réalisés en microscopie électronique en transmission, les particules primaires de suies ont toutes un aspect « structuré », c'est-à-dire faisant apparaître des enchaînements de plan d'atomes en plusieurs couches successives.

Les clichés de diffraction de ces particules primaires ont révélé des anneaux concentriques diffus (Figure 27b) pouvant correspondre à une structure turbostratique, dite en « pelure d'oignon », qui se présente sous la forme d'un arrangement concentrique de cristallites de graphène ayant extension latérale limitée à quelques nanomètres.

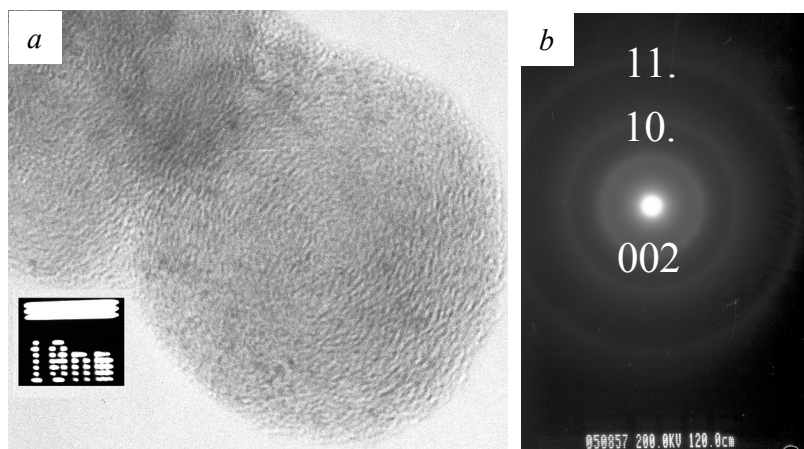


Figure 27 (a) particule de suie élémentaire par microscopie électronique en transmission – (b) diffraction de cette particule élémentaire de suie (CFM56-5C)

Les images obtenues en MET, qui résultent de la projection des objets étudiés dans le plan image du microscope, ne permettent pas d'établir si la structure des particules primaires est véritablement un arrangement des cristallites en « pelure d'oignon » ou si elle correspond à un désordre statistique des cristallites. Par ailleurs, le diffractogramme correspondant à ces particules de suie (Figure 27b) est compatible avec les textures de symétrie sphérique présentées sur la Figure 28, ce qui là encore ne permet pas d'établir sans ambiguïté la structure réelle de ces particules primaires de suie.

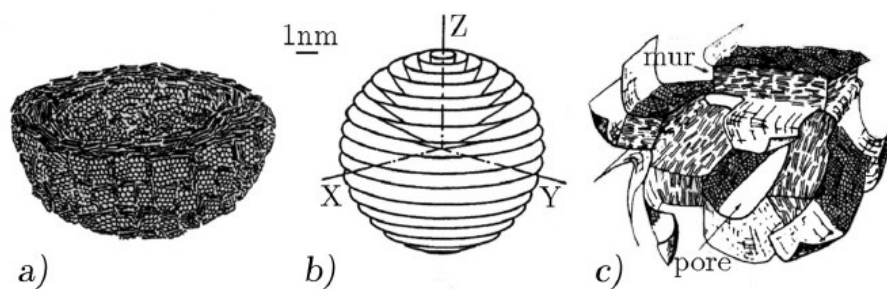


Figure 28 Structures solides à textures de symétrie sphérique : (a) texture sphérique concentrique, (b) texture sphérique radiale, (c) texture sphérique statistique [Bernier 1997]

L'analyse des clichés de diffraction à l'aide du logiciel libre d'analyse d'image « Image J » (<http://rsb.info.nih.gov/ij/>) permet d'établir des profils d'intensité (Figure 29) et de déterminer les distances réticulaires (Tableau 6) en utilisant la loi de Bragg appliquée au MET [Eberhart 1991]:

$$R_{hkl} \cdot d_{hkl} = \lambda L \quad (5)$$

avec

λL : une constante spécifique aux conditions de réglage du MET, en mmÅ

R_{hkl} : le rayon de l'anneau correspondant à diffraction des plans d'indices (hkl), en mm

d_{hkl} : la distance entre deux plans réticulaires d'indices (hkl), en Å

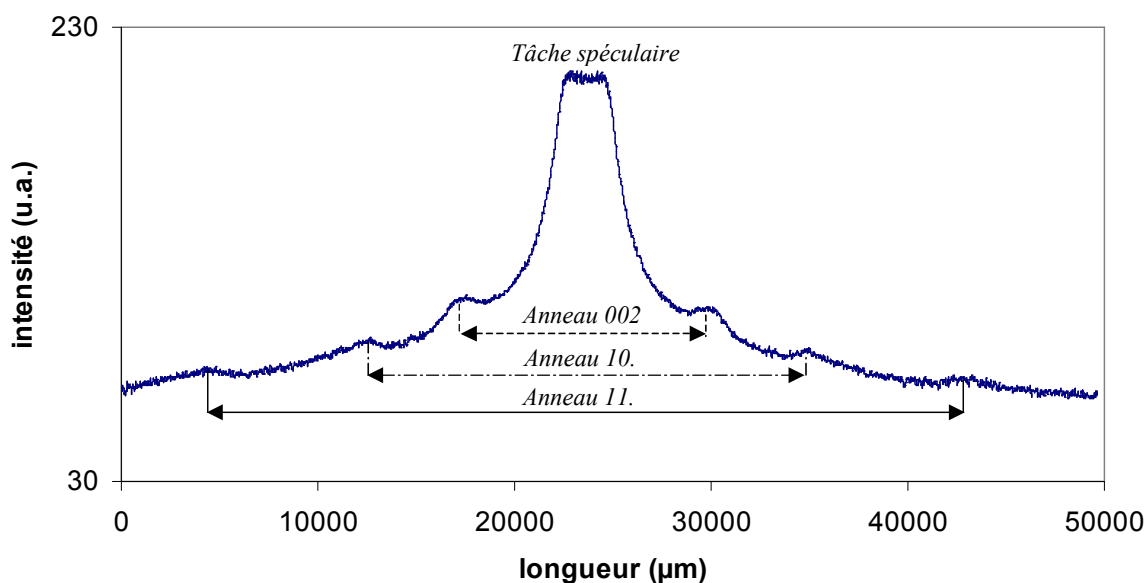


Figure 29 Exemple de profil d'intensité d'un cliché de diffraction

Plan		(002)	(10.)	(11.)
Distance réticulaire (Å)	Suie d'avion	$3,8 \pm 0,2$	$2,15 \pm 0,07$	$1,25 \pm 0,02$
	Graphite*	3,355	2,134	1,232

Tableau 6 Distances réticulaires moyennes mesurées (CFM56-5C)

Les valeurs des distances réticulaires déterminées (Tableau 6) pour les particules primaires de suie sont toutes supérieures à celles du graphite.

* maille hexagonale $\|\vec{a}\| = \|\vec{b}\| = 2,464 \text{ Å}$, $\|\vec{c}\| = 6,711 \text{ Å}$

IV.1.1.2. Distribution en taille des particules primaires

IV.1.1.2.1. Microscopie électronique à balayage: MEB

L'analyse des images numériques, avec le logiciel libre d'analyse d'image « Image J », permet de déterminer le diamètre des particules élémentaires de suie afin d'établir leur distribution en taille. Pour ce faire, nous avons numérisé les négatifs photographiques (avec une résolution >2000 dpi) obtenus lors des études par microscopie électronique. La Figure 30 illustre le principe de mesure utilisé pour l'exploitation des image MEB et MET. Nous réalisons un agrandissement d'une zone contenant des particules (exemple pour un agrégat de suie : Figure 30b) et nous identifions les particules présentes en ajustant un cercle sur chacune d'elle (Figure 30c). Le logiciel nous donne le diamètre de chaque cercle ajusté en pixels et nous convertissons ce dernier en nanomètre à partir de l'échelle de chaque cliché (MEB ou MET).

Comme les membranes en polycarbonate ne sont pas électriquement conductrices, nous avons utilisé un évaporateur EMITECH K950X pour les métalliser (intensité appliquée : 20 A, temps de sublimation : 2 s) avant de les observer en MEB.

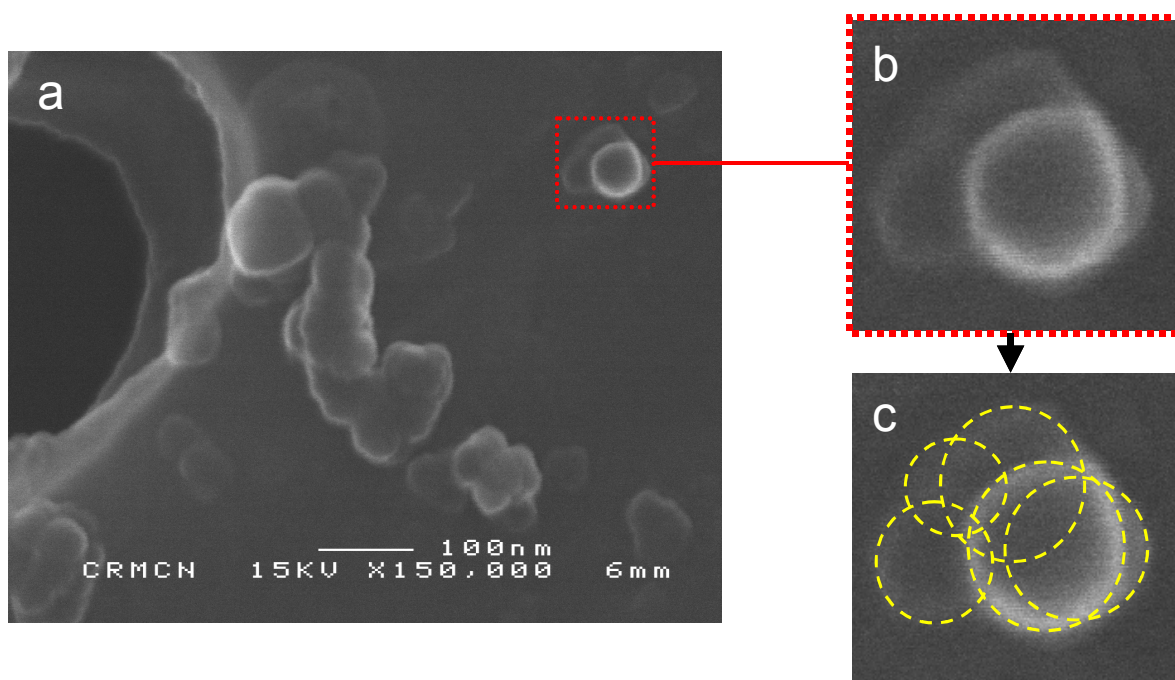


Figure 30 Principe de mesure des diamètres de particules primaires de suie : (a) image MEB d'un échantillon de suie, (b) agrandissement d'un agrégat et (c) composition de l'agrégat en particules primaires

Nous avons vérifié la reproductibilité de la collecte de suie sur les membranes en polycarbonate en déterminant les distributions en taille résultant des prélèvements effectués sur 3 jours successifs derrière un même moteur CFM56-5C (Figure 31 et Tableau 7). Il est important de noter que la distribution représentative d'une journée d'essai correspond aux cumuls des mesures faites sur plusieurs membranes placées à des endroits différents sur la plaque de collecte.

Distribution	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2	Porosité de la membrane (μm)
Jour 1	20,4	19,34	0,46	4922	16	0,9987	0,22
Jour 2	21,7	18,24	0,45	3750	26	0,9930	0,22
Jour 3	27,2	14,26	0,47	4822	21	0,9775	0,40

Tableau 7 Comparaison des coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors de chacun des trois jours de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage

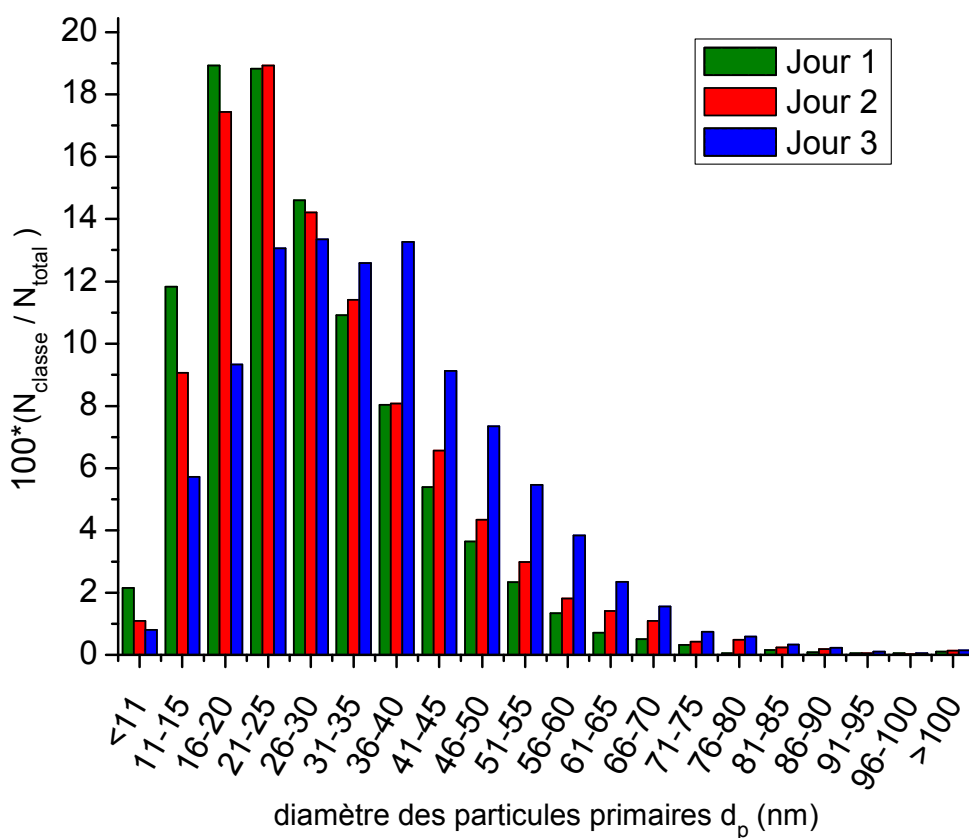


Figure 31 Comparaison des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors de chacun des trois jours de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage

La Figure 31 et le Tableau 7 ci-après indiquent que les caractéristiques des distributions en taille des particules primaires correspondant aux deux premiers jours d'essai sont quasiment identiques tandis que celles correspondant au prélèvement réalisé le troisième jour sont assez différentes.

Jour de collecte	Air à l'entrée du moteur	
	T (°C)	RH (%)
Début Jour 1	16,4	90
Fin Jour 1 et début Jour 2	10,6	84
Fin Jour 2 et début Jour 3	9,5	97
Fin Jour 3	3,5	95

Tableau 8 Paramètres de l'air admis dans le moteur lors des trois jours de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage de type I

Cette différence de profil de distribution observée lors du troisième jour peut avoir deux explications principales. D'abord, il y a eu une variation notable des conditions climatiques entre les deux premiers jours d'essai et le troisième jour (Tableau 8). En effet la température (T) et l'humidité relative (RH) de l'air entrant dans le moteur ont grandement évolué, ce qui n'est pas sans conséquence sur le fonctionnement de ce type de turboréacteur à haut taux de dilution (§ II.1.).

La seconde explication pourrait être liée à la porosité des membranes en polycarbonate utilisées pour la collecte d'échantillon. En effet, celle-ci étaient de 0,22 μm pour les supports employés lors des deux premiers jour de campagne alors que pour le troisième jour la porosité des membranes en polycarbonate étaient de 0,40 μm . Cette hypothèse est cependant peu probable puisqu'il a été possible de collecter des échantillons sur des fenêtres infrarouges dépourvues de pores. Mais l'influence de la taille des pores sera tout de même évaluée dans l'étude des échantillons du CFM56-5B (§ IV.2.1.2.1).

La méthode de collecte par impaction directe sur des membranes en polycarbonate est reproductible sur la base des résultats obtenus lors des prélèvements effectués sur les 2 jours où les conditions climatiques et les supports de collecte étaient identiques. Toutefois, il est intéressant de garder à l'esprit que des variations de conditions climatiques et/ou de porosité de membrane peuvent apparemment influencer sur la taille des particules primaires collectées.

La répétabilité des prélèvements a été également évaluée. Pour ce faire, plusieurs membranes en polycarbonate ont été placées en différents endroits de la plaque de collecte lors de chacun des 3 jours de prélèvements. Le Tableau 9 synthétise les caractéristiques des distributions en taille (des particules primaires de suie) établies sur chacune des membranes lors des trois jours de collecte derrière le CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage. Les valeurs intra-journalières sont proches mais il existe des variations notables dont le détail figure dans l'annexe II de ce mémoire.

	Jour 1			Jour 2		Jour 3		
Membrane (n°)	1	2	4	7	10	7	9	11
a_1 (nm)	26,5	18,3	20	19,7	27,4	38,4	31,4	20,2
a_2	0,46	0,38	0,44	0,36	0,46	0,33	0,38	0,42
N_{total}	1466	1380	2076	1930	1820	1046	2179	1597
Porosité des membranes (μm)	0,22	0,22	0,22	0,22	0,22	0,40	0,40	0,40
Type de distribution	II	I	I	I	II	II	II	I

Tableau 9 Comparaison des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors des trois jours de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage sur plusieurs membranes de porosité 0,22 μm et 0,40 μm

La comparaison des distributions en taille des particules primaires de suie déterminées pour chacune des huit membranes utilisées lors des trois jours d'essai fait ressortir deux types de distribution (Figure 32 et Figure 33) qui se différencient par leur valeur de diamètre géométrique moyen (a_1), ainsi que leur profil. Ces deux types de distributions en taille des particules primaires de suie sont indépendantes du jour de collecte et de la porosité des membranes. Les membranes formant chaque type sont regroupées dans le Tableau 9.

Le premier type de distribution présente une valeur moyenne géométrique comprise entre 20 et 30 nm tandis que le second type voit cette valeur comprise entre 30 et 40 nm. De plus, ces deux types de distribution présentent des différences notables de leur profil qui peut être illustré par l'effectif relatif cumulé, c'est-à-dire la proportion de particules ayant une taille inférieure ou égale à un diamètre donné (Tableau 10).

Taille (nm)	Effectif cumulé relatif (%)	
	Type I	Type II
≤ 40	90	64-70
≤ 50	97	83-88

Tableau 10 Différence sur l'effectif relatif cumulé entre les deux types de distribution

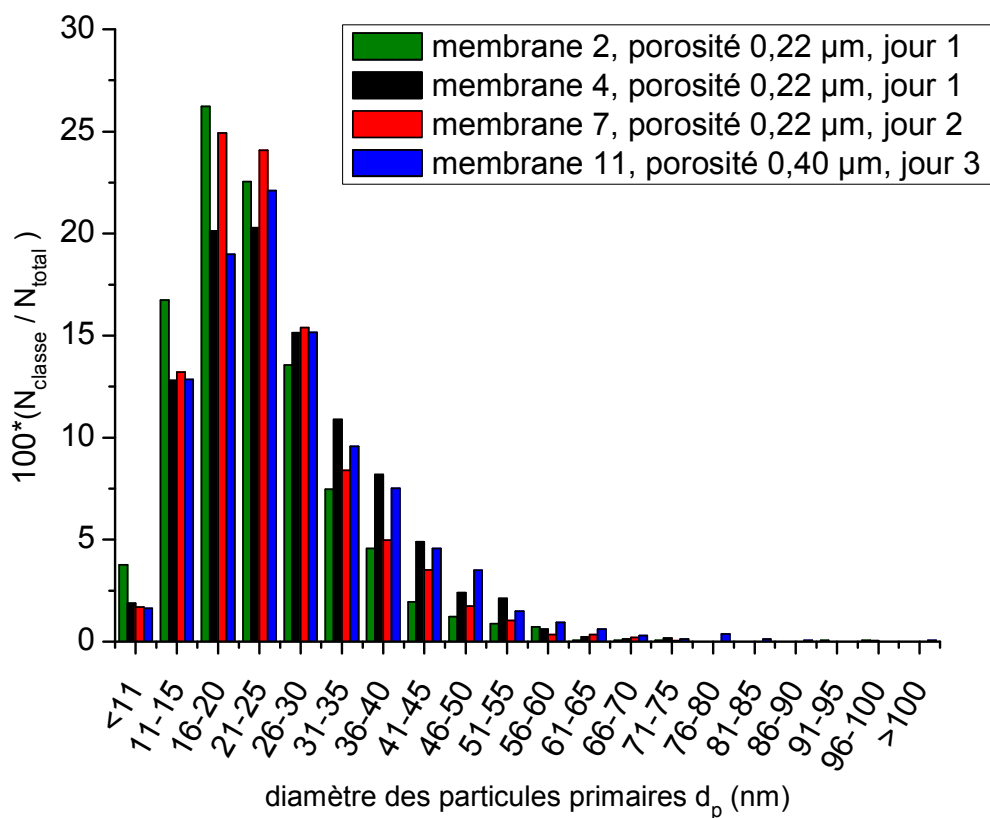


Figure 32 Distribution de type I

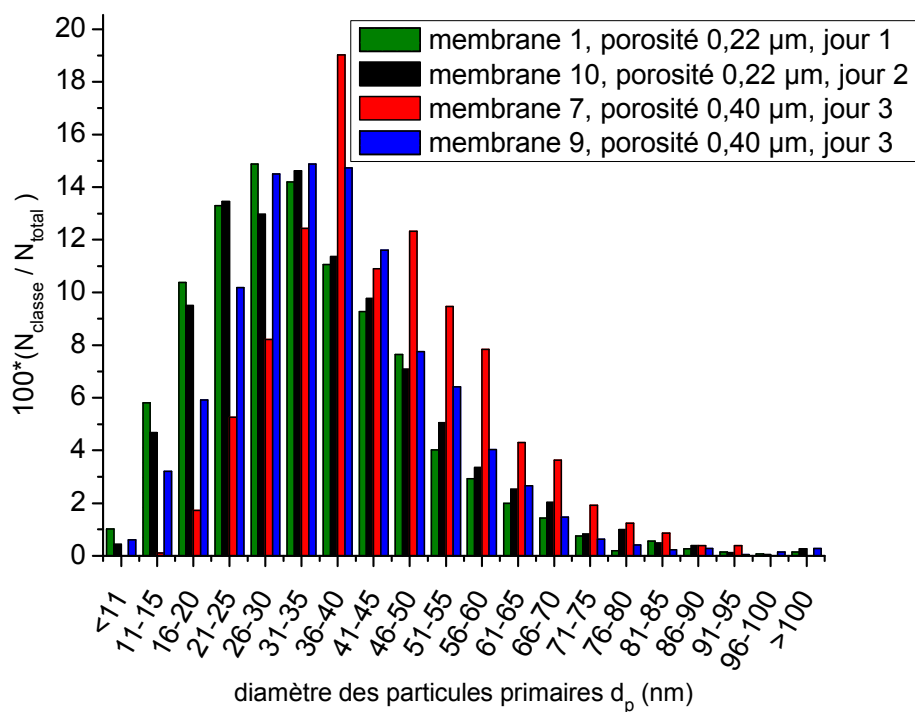


Figure 33 Distribution de type II

Il faut noter que nous retrouvons les profils de distribution en taille de type I et II quel que soit l'emplacement sur la plaque de fixation des support de collecte. De plus, la proportion entre les deux types de distribution est identique d'un jour de collecte à l'autre.

Les analyses entreprises sur les échantillons de suie prélevés par impaction montrent que le phénomène de dépôt de suie sur les différents supports utilisés est complexe. Toutefois, réaliser des distributions en taille en combinant les données mesurées sur plusieurs membranes, et ceci pour un grand nombre de particules primaires, ne présente pas de problème de reproductibilité et de répétabilité. Nous sommes donc en mesure d'établir la distribution en taille des particules primaires de suie émises par le moteur CFM56-5C.

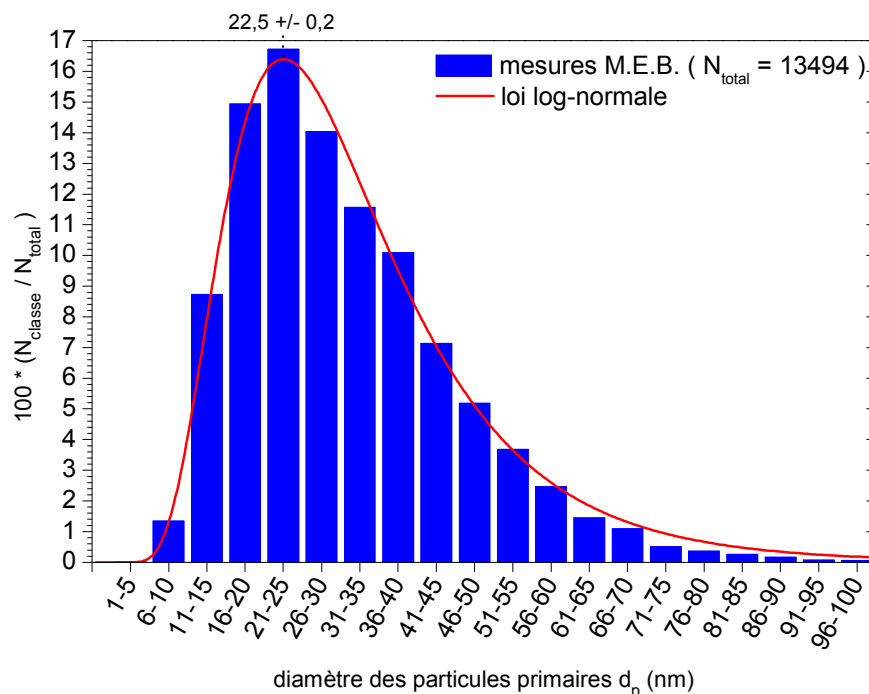


Figure 34 Distribution (MEB) en taille des particules primaires de suie collectées derrière un moteur CFM56-5C

La courbe présentée sur Figure 34 montre que la distribution en taille suit une loi log-normale avec une valeur de la moyenne géométrique égale à $22,5 \pm 0,2$ nm.

Moteur	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
CFM56-5B	22,5	16,49	0,49	13494	16-26-21	0,9963

Tableau 11 Paramètres de la distribution MEB en taille des particules primaires de suie mesurée lors de collecte derrière un moteur CFM56-5C

IV.1.1.2.2. Microscopie électronique en transmission: MET

La Figure 35 et le Tableau 12 regroupent les données relatives aux distributions en taille des particules primaires de suie établies à partir de l'analyse de micrographies de 2 grilles MET (paragraphe III.1.1.2) placées derrière un CFM56-5C lors d'une même journée de prélèvement. Les deux distributions sont pratiquement identiques avec un diamètre moyen géométrique situé entre 10 et 12 nm. Comme dans le cas de la microscopie électronique à balayage, ces mesures font ressortir la bonne reproductibilité des prélèvements sur les grilles de microscopie électronique en transmission.

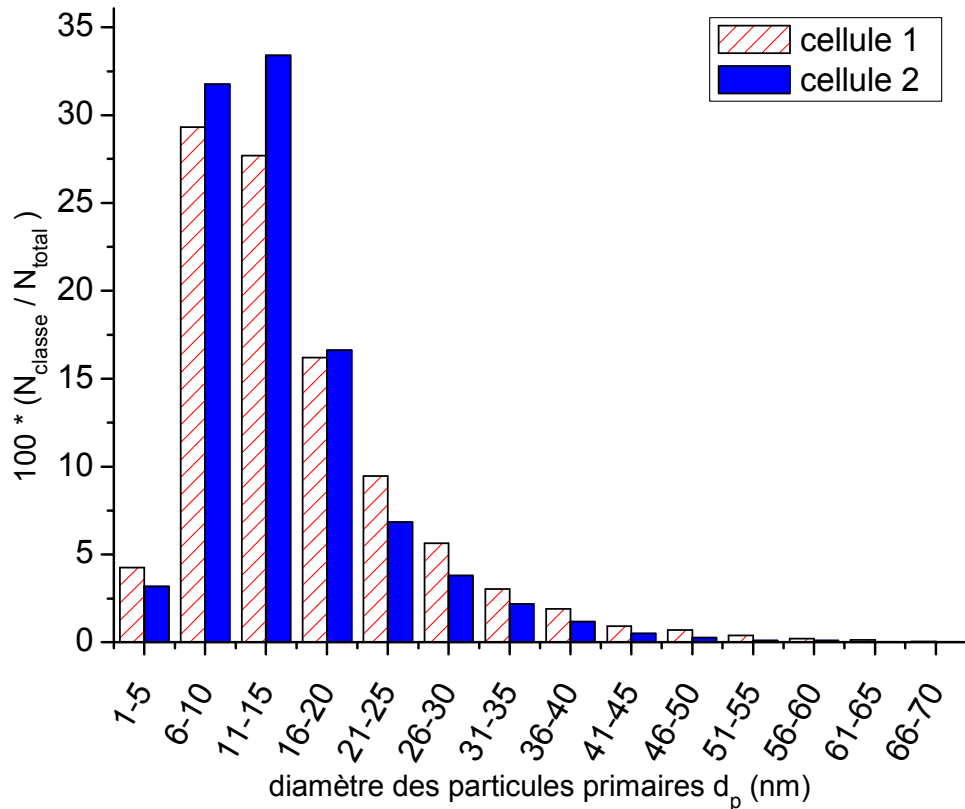


Figure 35 Distribution en taille de particules primaires de suie des deux dispositifs mis en place lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5C

Distribution	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
Cellule 1	9,6	31,13	0,57	4961	21	0,9991
Cellule 2	10,2	37,33	0,46	6385	21	0,9958

Tableau 12 Coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie des deux dispositifs mis en place lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5C

Les deux dispositifs mis en place pour collecter des échantillons derrière un CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage comportaient plusieurs grilles MET, ce qui nous a permis d'évaluer la répétabilité et la reproductibilité du processus d'échantillonnage. Les

distributions en taille des particules collectées sur chaque grille MET ont donc été déterminées et comparées entre elles (Figure 36, Figure 37 et Tableau 13, Tableau 14).

Le Tableau 13 regroupe les distributions en taille des particules primaires de suie déterminées sur 3 grilles du premier support mis en place lors de la collecte. Les trois distributions en taille présentent des caractéristiques pratiquement identiques avec une valeur du diamètre géométrique moyen situé entre 8 et 12 nm (Figure 36).

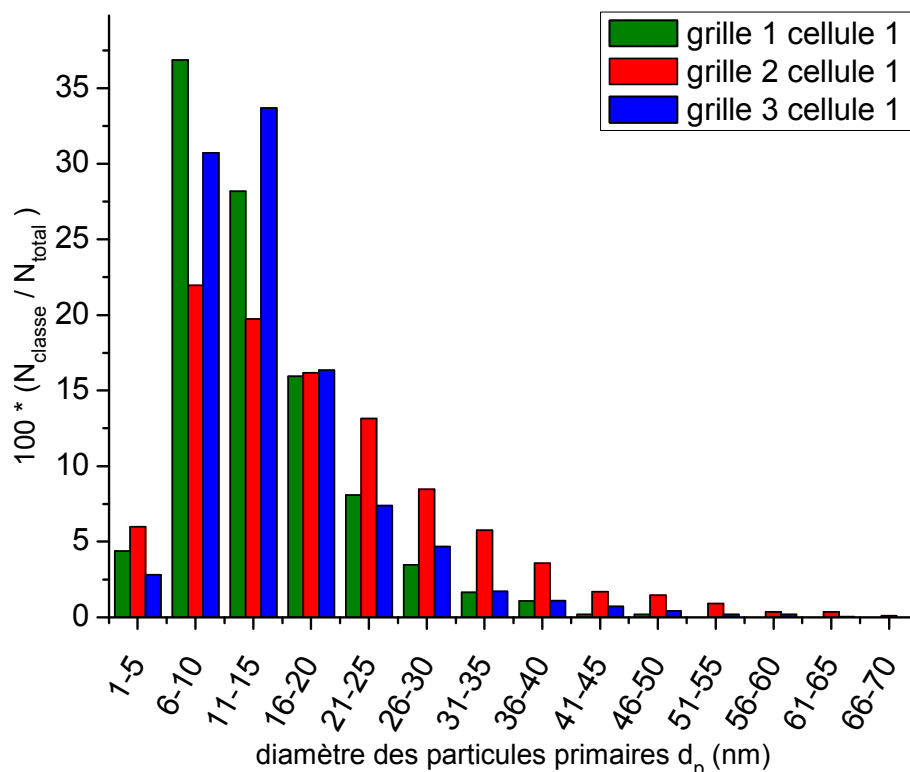


Figure 36 Distribution en taille de particules primaires de suie des grilles MET du premier dispositif mis en place lors de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage

Distribution	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
Cellule 1	9,6	31,13	0,57	4961	21	0,9991
Grille 1	8,9	37,23	0,53	1210	21	0,9993
Grille 2	9,9	22,62	0,72	1652	21	0,9908
Grille 3	10,4	36,90	0,45	2099	21	0,9951

Tableau 13 Coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie des grilles MET du premier dispositif mis en place lors de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage

Comme précédemment, le Tableau 14 regroupe les caractéristiques des distributions en taille établies à partir d'analyses effectuées sur trois grilles MET ayant été cette fois placées

sur la seconde cellule de collecte. Nous obtenons ici encore des distributions en taille très semblables avec des valeurs du diamètre géométrique moyen comprises entre 11 et 13 nm (Figure 37).

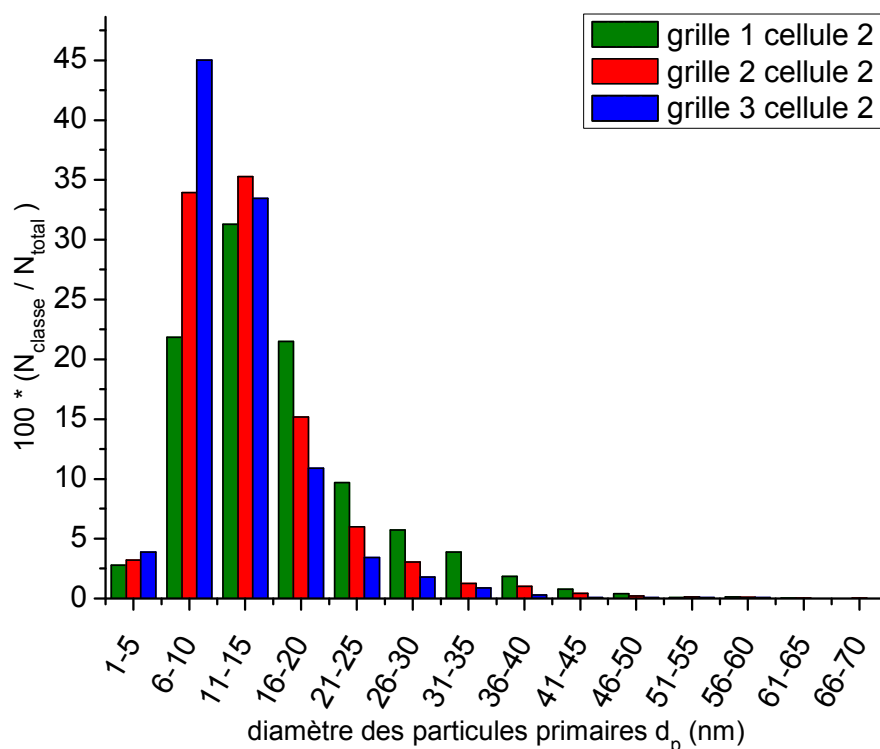


Figure 37 Distribution en taille de particules primaires de suie des grilles MET du deuxième dispositif mis en place lors de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage

Distribution	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
Cellule 2	10,2	37,33	0,46	6385	21	0,9958
Grille 1	11,8	31,67	0,46	2373	21	0,9934
Grille 2	11,2	40,78	0,42	2673	21	0,9951
Grille 3	9,0	47,19	0,43	1339	21	0,9967

Tableau 14 Coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie des grilles MET du deuxième dispositif mis en place lors de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage

Le dispositif (paragraphe III.1.1.2) permettant de prélever des échantillons de suie sur des grilles de microscope électronique en transmission (MET) se révèle être très performant vis-à-

vis des conditions de collecte peu communes induites par le fonctionnement d'un moteur d'avion à plein régime, mais aussi en terme de reproductibilité et répétabilité.

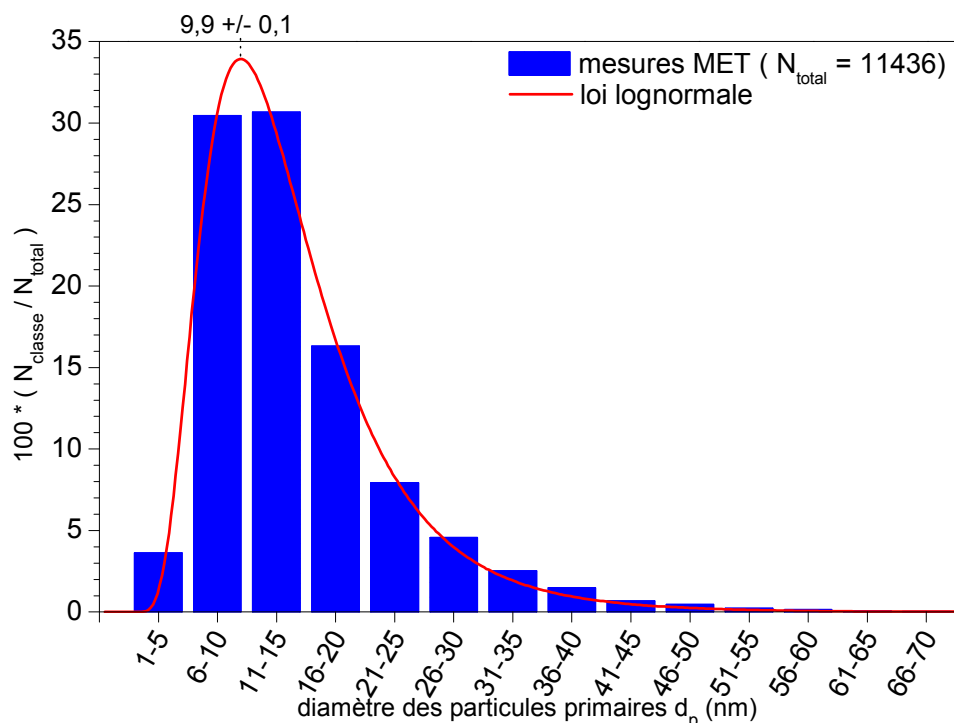


Figure 38 Distribution (MET) en taille des particules primaires de suie collectées derrière un moteur CFM56-5C

Les analyses réalisées montrent que la distribution en taille des particules primaires suit une loi de type log-normale avec une moyenne géométrique égale à $9,9 \pm 0,1$ nm.

IV.1.1.3. Comparaison des distribution des particules primaires

L'utilisation conjointe de la microscopie électronique à balayage (MEB) et de la microscopie en transmission (MET) a permis de comparer les résultats obtenus sur des échantillons prélevés simultanément, donc dans des conditions identiques. La Figure 39 et le Tableau 15 mettent en évidence des différences notables entre les résultats obtenus par les deux techniques de microscopie quant aux caractéristiques de la distribution en taille des particules primaires de suie. Cependant, bien que ces deux techniques montrent que les distributions en taille de particules primaires suivent une loi log-normale, la valeur de leur moyenne géométrique présente des variations importantes qui semblent liées à la technique utilisée (MEB ou MET). Ce « décalage » observé nous a conduit à poursuivre des investigations qui sont développées dans le paragraphe V.1.

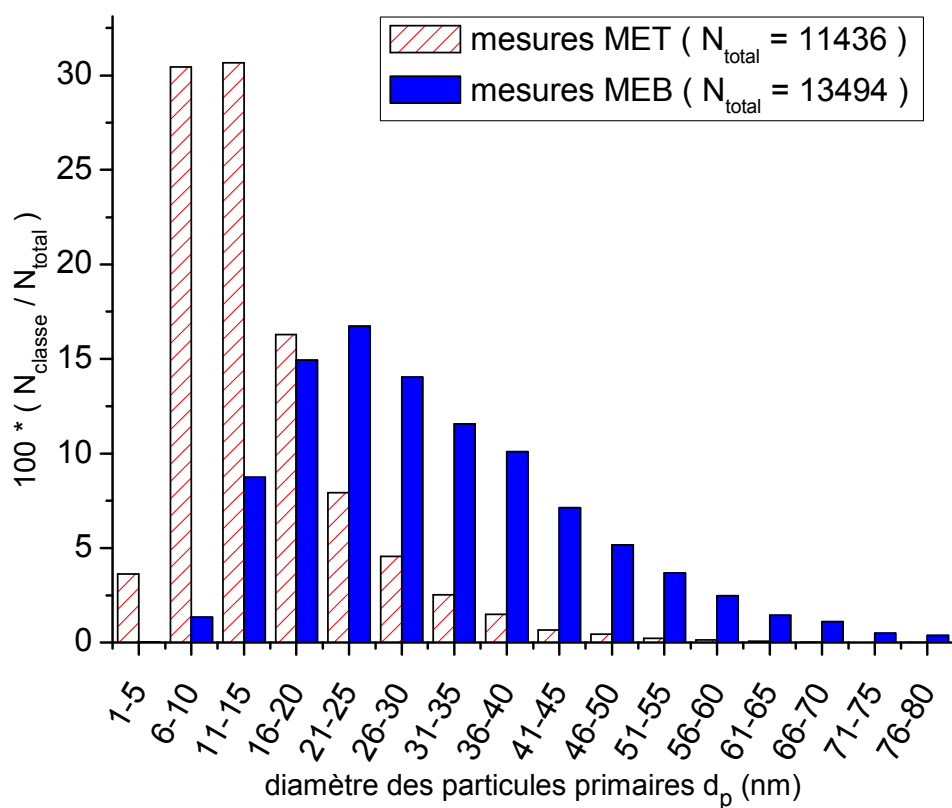


Figure 39 Comparaisons des distributions en taille des particules primaires obtenues par MET et MEB lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5C

CFM56-5C	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
MET	9,9	34,20	0,51	11346	21	0,9967
MEB	22,5	16,49	0,49	13494	16-26-21	0,9963

Tableau 15 Paramètres numériques des distributions des particules primaires obtenues lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5C

IV.1.1.4. Etude des agrégats

Après avoir caractérisé la structure et la taille des particules élémentaires de suie, il est intéressant de porter notre attention sur les caractéristiques physiques des agrégats car c'est sous cette forme que la suie est émise par les turboréacteurs.

IV.1.1.4.1. Nombre de particules primaires dans les agrégats

La caractérisation d'un agrégat repose généralement d'abord sur la connaissance du nombre de particules primaires N qui le compose. Ce nombre de particules primaires peut s'obtenir à partir de la mesure de l'aire projetée A de l'agrégat, et de l'aire moyenne projetée \bar{A}_p d'une particule primaire de diamètre moyen \bar{d}_p . En effet, Neer *et al.* [Neer 2006] ont montré que le nombre de particules primaires par agrégat peut s'obtenir en utilisant la relation suivante :

$$N = k_a \left(\frac{A}{\bar{A}_p} \right)^\alpha = k_a \left(\frac{4 \cdot A}{\pi \cdot \bar{d}_p^2} \right)^\alpha \quad (6)$$

où les coefficients k_a et α ont une valeur respective de 1,155 et 1,095. Notre analyse portant sur 385 agrégats conduit à des valeurs $20 \leq N \leq 7000$.

Or Meakin *et al.* [Meakin 1989] ont également montré que si $N \leq 10000$, les coefficients α et k_a varient en fonction du nombre de particules composant l'agrégat, et la relation entre les aires projetées A , \bar{A}_p , et le nombre de particules primaires composant un agrégat s'écrit :

$$\frac{A}{\bar{A}_p} = 0,4784 \cdot N + 0,5218 \cdot N^{0,7689} \quad (7)$$

Les équations (6) et (7) permettent donc de déterminer les valeurs des coefficients k_a et α et notre analyse nous conduit à $k_a = 1,2093$ et $\alpha = 1,0487$ pour $20 \leq N \leq 7000$.

La Figure 40 représente la distribution du pourcentage d'agrégats composés de N particules primaires en fonction du nombre de particules primaires. Cette distribution est de type log-normale avec un maximum de probabilité pour $N = 66 \pm 3$ particules primaires.

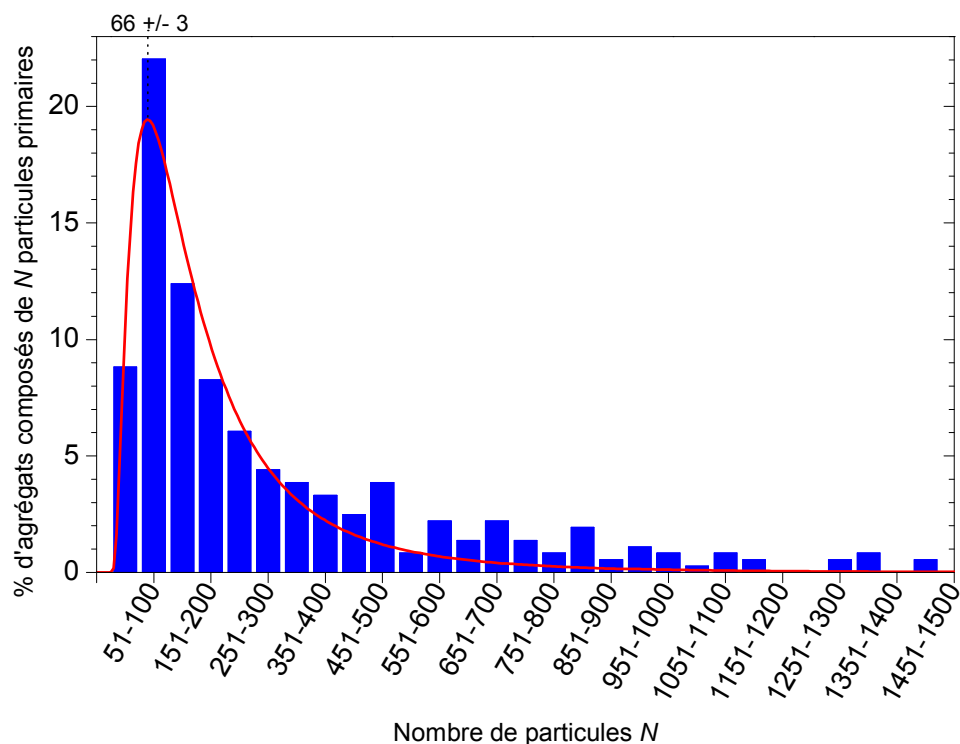


Figure 40 Distribution du nombre d'agrégat en fonction du nombre de particules primaires les composant, pour des suies provenant d'un moteur CFM56-5C

Il est intéressant de noter que 75 % des agrégats sont composés de moins de 500 particules primaires de suie comme l'indique le tableau suivant :

Nombre de particules primaires	≤100	≤ 200	≤ 300	≤ 400	≤ 500	≤1000
Pourcentage d'agrégats (%)	30,8	51,5	62,0	69,1	75,5	88,7

Tableau 16 Répartition du nombre de particules primaires composant les agrégats de suie observés derrière un moteur CFM56-5C

IV.1.1.4.2. Dimension fractale

En utilisant l'hypothèse de quasi-fractalité des agrégats de suie, couramment évoquée dans la littérature (§ I.2.3.2), il est possible de déterminer la dimension fractale projetée de ces agrégats. Cette dimension fractale projetée $D_{f,2D}$ des agrégats est établie à partir de la relation suivante :

$$N = k_L \left(\frac{L}{\overline{d_p}} \right)^{D_{f,2D}} \quad (8)$$

où L est la longueur projetée maximale de l'agrégat considéré, N est le nombre de particules primaires le constituant, et k_L est une constante de corrélation.

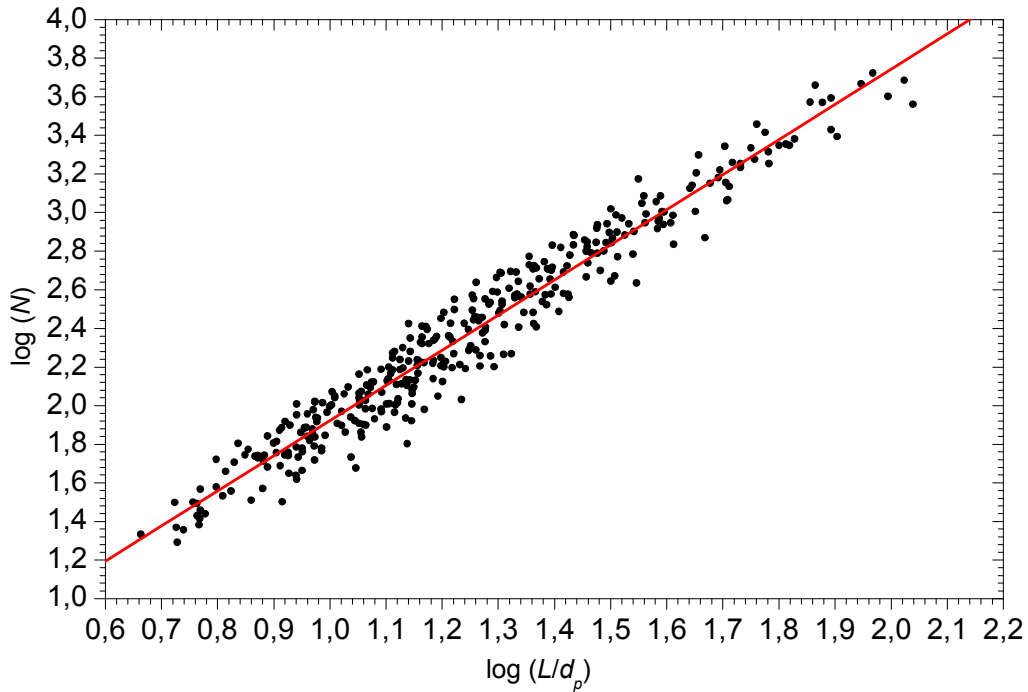


Figure 41 Détermination de la dimension fractale 2D des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5C

Une analyse portant sur 363 agrégats conduit à une valeur de la dimension fractale projetée $D_{f,2D} = 1,83 \pm 0,05$ et à une valeur du coefficient préfractal lié à la longueur maximale $k_L = 1,06 \pm 0,03$ (Figure 41). La détermination de la dimension fractale 3D ($D_{f,3D}$) à partir de $D_{f,2D}$ s'effectue ensuite en utilisant la relation [Baron 2001] :

$$D_{f,3D} = D_{f,2D} \cdot \alpha \quad (9)$$

où $\alpha = 1,0487$ dans notre cas (§ IV.1.1.4.1). Il vient donc $D_{f,3D} = 1,91 \pm 0,05$.

Pour caractériser un objet fractal, il faut également associer à sa dimension fractale projetée $D_{f,2D}$ le préfacteur fractal k_f plutôt que la constante de corrélation k_L car il caractérise la morphologie et la taille des agrégats. Meakin *et al.* [Meakin 1989] ont également montré que k_f et k_L sont liés par la relation :

$$\frac{k_f}{k_L} = \left(\frac{L}{\bar{d}_{g,2D}} \right)^{D_{f,2D}} = \left(\frac{D_{f,2D} + 2}{D_{f,2D}} \right)^{\frac{D_{f,2D}}{2}} \quad (10)$$

Soit encore :

$$k_f = k_L \times \left(\frac{D_{f,2D} + 2}{D_{f,2D}} \right)^{\frac{D_{f,2D}}{2}} \quad (11)$$

ce qui conduit à la valeur : $k_f = 2,086$.

IV.1.1.4.3. Diamètre de giration

Un agrégat peut aussi être défini par son diamètre de giration d_g qui correspond au diamètre d'une coquille sphérique mince de même masse et de même moment d'inertie [Atkins 1998] que l'agrégat considéré. Le diamètre de giration projeté ($d_{g,2D}$) de chaque agrégat peut être déterminé en utilisant la relation :

$$N = k_L \times \left(\frac{L}{\bar{d}_p} \right)^{D_{f,2D}} = k_f \times \left(\frac{d_{g,2D}}{\bar{d}_p} \right)^{D_{f,2D}} \quad (12)$$

qui conduit à

$$d_{g,2D} = \bar{d}_p \times \left(\frac{N}{k_f} \right)^{\frac{1}{D_{f,2D}}} \quad (13)$$

Ainsi, il nous est possible de déterminer la distribution des agrégats de suie en fonction de leur diamètre de giration projeté qui est représentée sur la Figure 42.

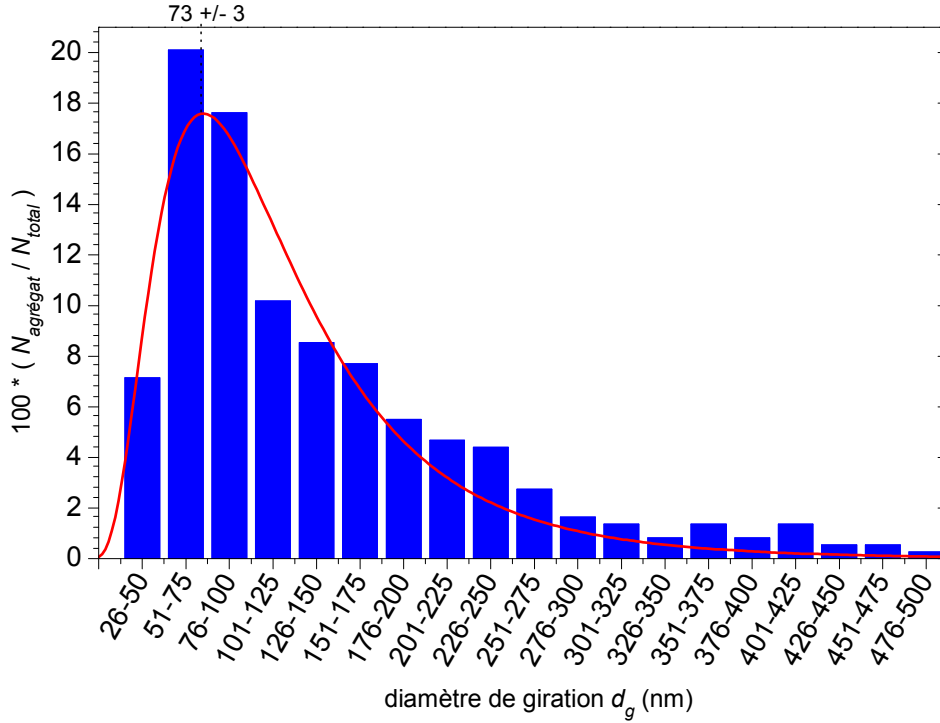


Figure 42 Distribution des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5C en fonction de leur diamètre de giration

Cette distribution suit une loi log-normale avec une valeur du diamètre de giration moyen $d_{g,2D} = 73 \pm 3$ nm (Tableau 17).

Moteur	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	Nombre total d'agrégats	R^2
CFM56-5C	73	17,59	0,60	363	0,9489

Tableau 17 Paramètres de la distribution des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5C en fonction de leur diamètre de giration

Tout comme la dimension fractale, il existe une relation permettant de déterminer le diamètre de giration 3D ($d_{g,3D}$) à partir de $d_{g,2D}$ [Baron 2001] :

$$d_{g,3D} = \sqrt{\frac{3}{2}} \cdot d_{g,2D} \quad (14)$$

Nous obtenons ainsi une valeur du diamètre de giration $d_{g,3D} = 89 \pm 4$ nm pour le maximum de la distribution.

IV.1.2. Caractérisation chimique

IV.1.2.1. Spectrométrie de rayons X

L'étude par microscopie électronique nous a permis d'observer différents objets d'échelle nanométriques, comme les particules primaires et les agrégats de suie, mais aussi d'autres objets tels que des composés métalliques. Afin de connaître la nature des éléments chimiques présents, des analyses par spectrométrie de rayons X ont été effectuées. Le Tableau 18 regroupe des résultats obtenus à l'aide de cette technique sur divers objets.

Objet observé		Paramètres d'analyse		Elément chimique (en atome)								
Nature	Localisation ¹	Référence	Temps d'accumulation (s)	C (%)	Cu (%)	S (%)	Si (%)	O (%)	Cl (%)	Fe (%)	Cr (%)	Ni (%)
Blanc	Sur la surface	carbone	60	95,28	1,33	0,06	0,81	2,52	0,00	X	X	X
Suie	Dans un trou	carbone	120	97,65	0,80	0,07	0,16	1,32	0,00	0,00	X	X
Suie	Dans un trou	carbone	120	97,77	1,01	0,09	0,13	1,00	X	X	X	X
Suie	Dans un trou	carbone	120	97,53	X	0,21	X	2,27	X	X	X	X
Suie	Sur la surface	carbone	120	97,07	0,81	0,08	0,25	1,80	0,00	0,00	X	X
Suie	Sur la surface	carbone	60	96,29	1,22	0,17	0,29	2,03	0,00	X	X	X
Suie	Sur la surface	carbone	60	96,26	1,86	0,11	0,21	1,56	0,00	X	X	X
Suie	Sur la surface	carbone	120	95,54	2,07	0,34	0,26	1,78	X	X	X	X
Suie	Sur la surface	carbone	120	95,94	1,48	0,42	0,07	2,09	0,00	0,00	X	X
Objet métallique	Sur la surface	carbone	60	46,09	30,73	12,56	0,00	10,14	0,48	X	X	X
Objet métallique	Sur la surface	carbone	120	83,65	2,96	0,17	0,22	0,01	X	9,15	2,67	1,17
Objet métallique	Sur la surface	carbone	100	7,48	6,99	18,26	0,00	30,87	0,00	36,38	X	X

X : non mesuré ; ¹ : La surface des grilles MET utilisées est constituée d'une membrane en carbone trouée

Tableau 18 Analyse chimique élémentaire par EDX sur des échantillons issus d'un moteur CFM56-5C

Des mesures de « blancs » sur les supports ont d'abord été réalisées afin d'évaluer leur influence lors de l'analyse réalisée sur des particules déposées sur leur surface. En effet, les grilles MET utilisées sont de type « holey carbon film » où la grille de cuivre est recouverte

d'une fine membrane de carbone amorphe trouée. Ainsi, la présence de silicium résultant du procédé de fabrication des supports a été mise en évidence.

Nous avons étudié des suies localisées dans des trous du support et sur celui-ci. L'analyse quantitative des éléments détectés indique que les suies sont essentiellement constituées (en pourcentage atomique) de : carbone : $98,3 \pm 2,5\%$; oxygène : $1,5 \pm 0,4\%$ et soufre : $0,12 \pm 0,05\%$. Ces valeurs sont relatives et basées sur la somme des contributions du carbone, de l'oxygène, et du soufre pour les suies localisées dans des trous afin de limiter au maximum l'influence du support.

Enfin, des objets métalliques correspondant à des oxydes de cuivre et de fer, ou encore à des alliages ont été observés. Ils sont les témoins de l'usure du turboréacteur et plus particulièrement des aubes de turbine (FAN) et de la chambre de combustion.

Il est intéressant de noter la présence de soufre au niveau de la suie. Cet élément provient de l'huile de lubrification et du kérosène. Lors de la combustion puis de l'émission, différents composés soufrés (SO_x , SO_y , acide sulfurique...) se forment et interagissent avec les particules. Toutefois, les particules de suie contiennent très peu de soufre. A contrario, les analyses chimiques élémentaires des oxydes métalliques ont révélé de fort taux de soufre allant jusqu'à plus de 18 % (en pourcentage atomique).

IV.1.2.2. Spectroscopie infrarouge

La nature des éléments chimiques présents étant établie, nous avons poursuivi nos investigations sur la «composition chimique» des suies émises par les moteurs d'avion en nous intéressant à la détermination des groupements chimiques fonctionnels de surface. Nous avons donc réalisé des mesures par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier sur des échantillons de suie collectés sur les fenêtres en silicium du dispositif de prélèvement. Ces échantillons contiennent des particules de suie mais également d'autres éléments émis par le moteur, et notamment de l'huile. En effet, à la différence d'un brûleur de laboratoire ou d'une chambre de combustion, un turboréacteur a besoin d'huile de lubrification surtout lors des phases de ralenti, ce qui a pour conséquence une présence notable de cette huile dans les émissions. Afin d'obtenir le spectre infrarouge correspondant aux particules de suie, les signaux de l'huile et du support en silicium sont éliminés du spectre total. La Figure 43 représente un spectre de la suie émise par le moteur CFM56-5C.

Sur ce spectre, les fonctions alcools libres et associées ($3000\text{-}3300\text{ cm}^{-1}$), carbonyles (1750 cm^{-1}), alcanes ($2800\text{-}3000\text{ cm}^{-1}$), sulfures ($500\text{-}750\text{ cm}^{-1}$) et disulfures ($500\text{-}550\text{ cm}^{-1}$) sont observées. Ces fonctions chimiques concordent parfaitement avec la nature des éléments chimiques détectés par la micro-analyse X. Les fonctions alcools libres peuvent être liées aux fonctions carbonyles pour établir la fonction acide carboxylique. Les signaux correspondant aux groupes CH_2 et CH_3 sont probablement liés à la structure graphitique imparfaite des suies (bords de plans, groupements aliphatiques..) et à des molécules adsorbées à la surface des suies (imbrûlés,...).

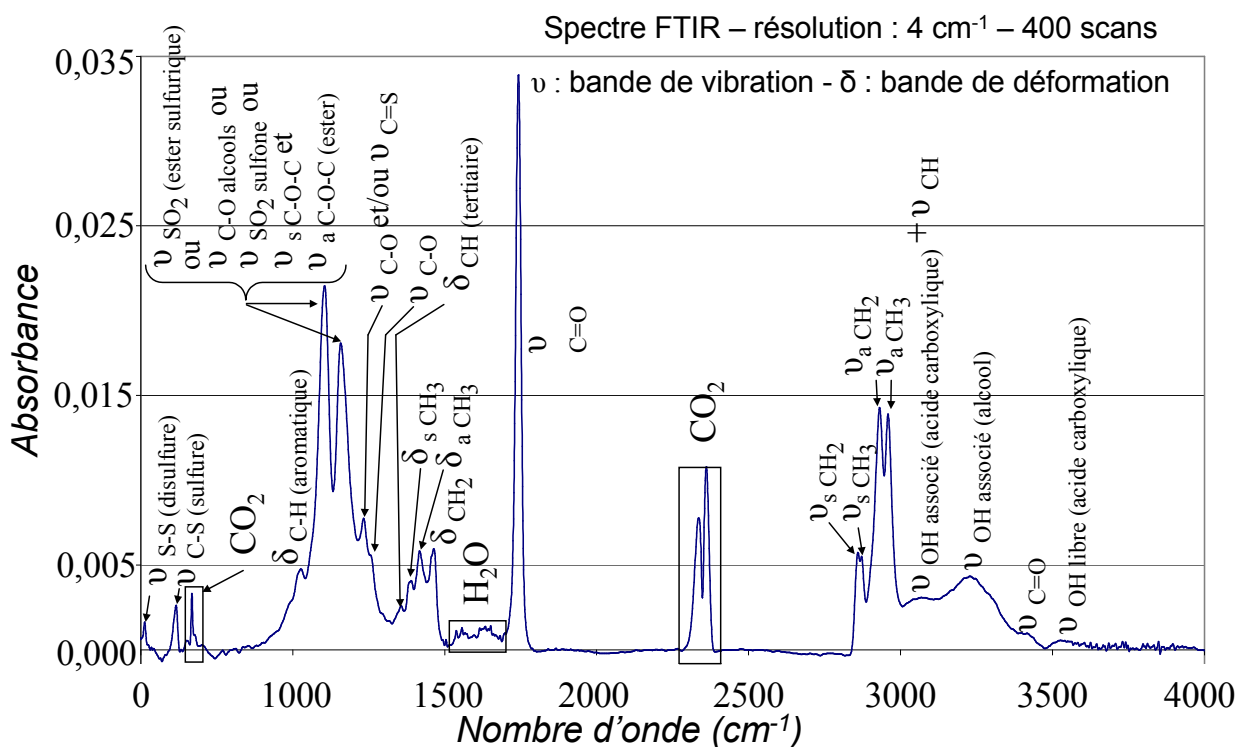


Figure 43 Spectre infrarouge de la suie émise par un moteur CFM56-5B après soustraction du signal de l'huile (avec ν_a : vibration de valence asymétrique, ν_s : vibration de valence symétrique, δ_a : vibration de déformation asymétrique et δ_s : vibration de déformation symétrique)

IV.1.2.3. Chromatographie

Nous avons réalisé des analyses chromatographiques pour mettre en évidence la présence/l'absence de certaines molécules. Nous nous sommes focalisés sur la famille des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) car elle est reconnue comme étant cancérigène [Barbusse 2005], [Brignon 2006], [Tron 2002] et fait partie des familles prioritaires recherchées dans le cadre de la qualité de l'air. Ces HAP sont générés lors des processus de combustion [Vollhardt 1999], [§ I.2.2] lorsque ceux-ci sont incomplets.

Pour réaliser ce type d'analyse, nous avons utilisé des filtres en fibre de verre (GFF) et en quartz pour collecter des échantillons. Ces filtres ont été choisis car ils présentent les avantages d'être généralement efficaces pour la collecte d'échantillon et de pouvoir facilement subir la phase d'extraction à base de solvants organiques.

Le protocole d'extraction et d'analyse des HAP est décrit dans un rapport de Ruiz *et al.* [Ruiz 2006] et il permet de quantifier la présence de 18 molécules différentes. Notons que le délai entre le prélèvement et l'analyse des échantillons a été assez important ce qui rend ces résultats intéressants sur le plan qualitatif, mais limite leur pertinence sur l'aspect quantitatif.

Durant la phase de prélèvement, les filtres accumulent de la suie, de l'huile et éventuellement d'autres éléments. La mesure de variation de masse avant et après exposition aux émissions du moteur indique que les filtres de quartz ne sont pas adaptés, à la différence des filtres en fibres de verre (GFF). Les pesées des filtres de quartz donnent des résultats d'autant plus variables que le nombre de cycles décroît, faisant même apparaître des valeurs

négatives. Ce comportement peut s'expliquer par l'érosion du filtre lors de son exposition au flux du moteur [Baron 2001]. En ce qui concerne les filtres en fibres de verre, aucune valeur négative de variation de masse n'a été mesurée. Les résultats sont plus homogènes, surtout lorsque le nombre de cycles subis augmente (Tableau 19). De plus, l'augmentation de masse semble être linéaire avec le nombre de cycle et répond à l'équation :

$$\text{Masse totale d'échantillon en mg} = 0,0569 \times \text{Nombre de cycle} + 0,0308 \quad (15)$$

Avec un coefficient de corrélation $R^2 = 0,9994$ et pour un nombre de cycles compris 16 et 47. Le terme égal à 0,0308 est lié aux incertitudes de pesée.

Les résultats détaillés des pesées sont exposés dans l'annexe III de ce manuscrit, tandis que les analyses chromatographiques sont présentées dans le rapport de Ruiz *et al.* [Ruiz 2006].

Type de filtre	GFF	GFF	GFF
Nombre de cycles	16	21	47
Nombre de filtre	6	4	4
Variation de masse du filtre (mg)	$0,92 \pm 0,55$	$1,25 \pm 0,19$	$2,70 \pm 0,50$
Variabilité des mesures de masses(%)	60	15	18
Masse totale de HAP (ng)	0,2 à $1,9 \pm 0,5$	6,0 à $10,3 \pm 0,4$	12,1 à $15,2 \pm 0,1$

Tableau 19 Variation de masse des filtres en fibres de verre (GFF)

L'ensemble des analyses effectuées sur les filtres en fibres de verre indique une présence détectable, mais faible, de HAP (quelques nanogrammes) dans les échantillons de suie comprenant leur matrice. Les molécules prédominantes sont le pyrène (CAS n°12900-0), le fluoranthène (CAS n°206-44-0), et le phénanthrène (CAS n°97193-05-0). Ces trois molécules ont pour points communs d'avoir une structure relativement simple, des températures d'ébullition et des coefficients de partition ($\log K_{ow}$) proches [Lide 1998-1999].

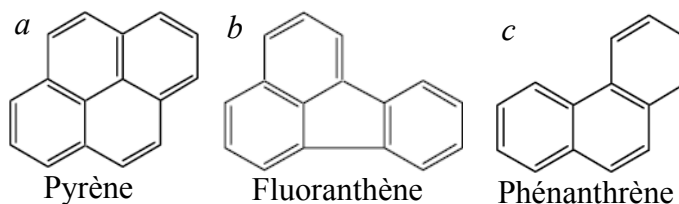


Figure 44 Structure de la molécule de : (a) pyrène, (b) fluoranthène, et (c) phénanthrène

Il faut noter qu'il ne nous a pas été possible d'identifier la (ou les) source(s) des HAP mesurés car ces molécules peuvent provenir de la surface des suies comme résidu de combustion (paragraphe I.2.2), ou de l'huile et/ou du carburant car ces deux composés contiennent des HAP [Brignon 2006].

IV.2. Etude des suies émises par un CFM56-5B

IV.2.1. Caractérisation physique

IV.2.1.1. Morphologie et structure

L'étude des émissions du turboréacteur CFM56-5B nous a permis d'obtenir des échantillons de suies sur des membranes en polycarbonate et des grilles de microscopie électronique. Les agrégats et particules déposés sur ces supports ont été étudiés par MEB et MET. Nous présentons ci-dessous quelques clichés illustrant les morphologies observées :

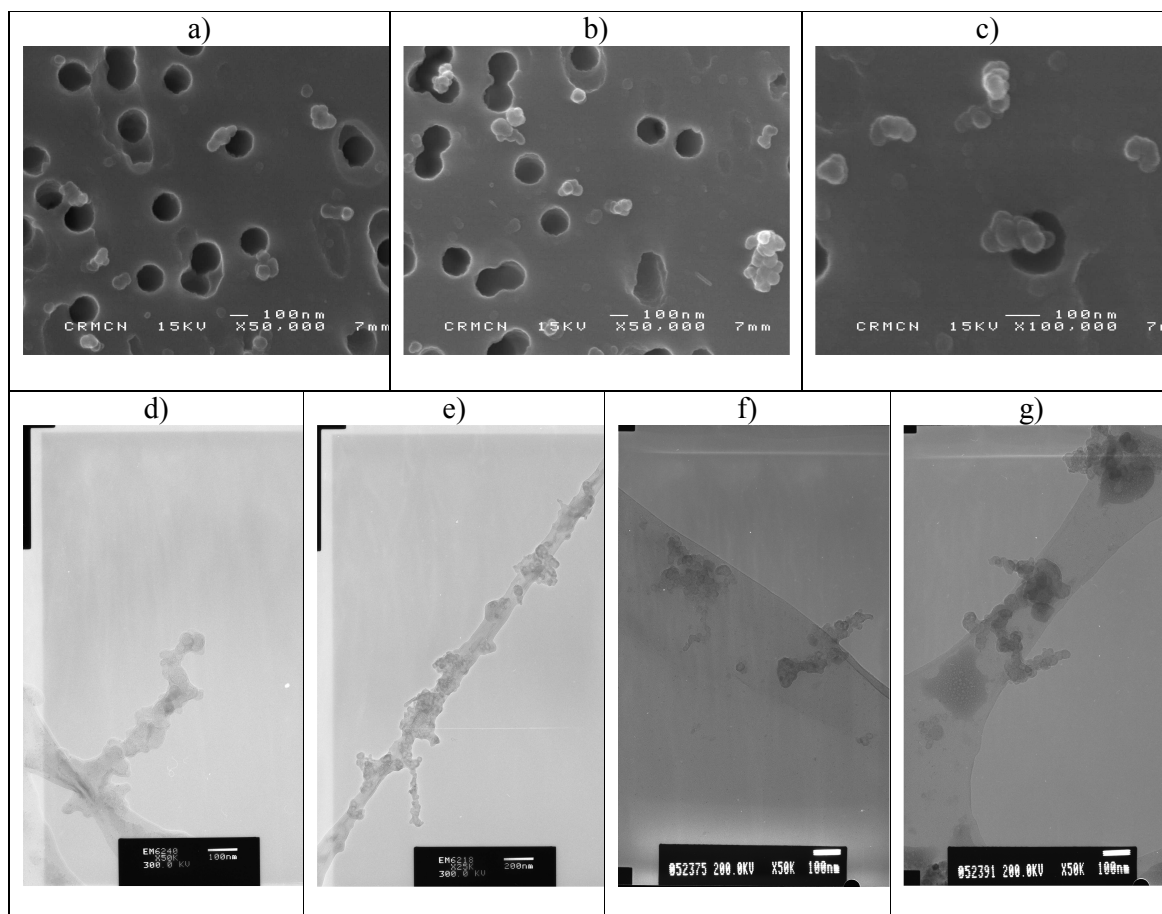


Figure 45 agrégats de suie émis par un turboréacteur CFM56-5B et observés en MEB (a, b, c) et MET (d, e, f, g)

L'étude des images obtenues par MEB et par MET met en évidence la morphologie sphérique des particules primaires de suie (Figure 45). Les clichés réalisés en MET montrent que les particules primaires de suie présentent une structure constituée de cristallites (ensembles de quelques plans atomiques) de taille limitée, arrangés de manière concentrique (Figure 46a). Sur l'ensemble des clichés réalisés en microscopie électronique en transmission, les particules primaires de suie ont toutes un aspect « structuré », c'est-à-dire faisant apparaître des enchaînements concentriques de plans d'atomes en plusieurs couches successives.

Les diffractogrammes sont constitués d'anneaux diffus concentriques (Figure 46b) typiques d'une structure turbostratique. Cette structure pourrait correspondre à un réseau concentrique de cristallites de graphène ayant une taille limitée à quelques nanomètres (§ I.2.3.1).

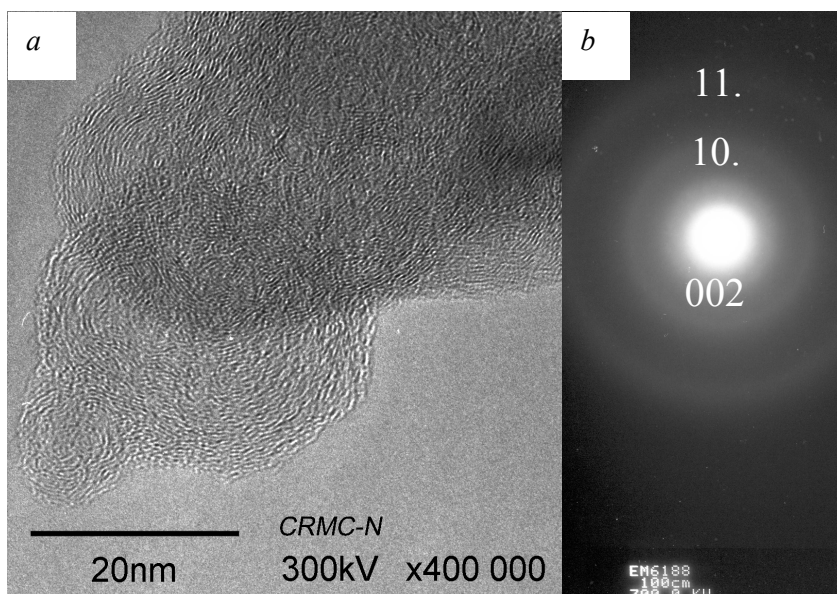


Figure 46 (a) particules primaires de suie observées par microscopie électronique en transmission et (b) diffractogramme de ces particules (moteur CFM56-5B)

Plan		(002)	(10.)	(11.)
Distance réticulaire (Å)	Suie d'avion	$4,2 \pm 0,2$	$2,27 \pm 0,1$	$1,32 \pm 0,03$
	Graphite *	3,355	2,134	1,232

Tableau 20 Distances réticulaires moyennes mesurées (CFM56-5B)

Les valeurs de distances réticulaires déterminées (Tableau 20) indiquent une relaxation des distances entre plans atomiques par rapport au graphite. Celle-ci est supérieure à ce qui a été déterminé pour les suies émises par un moteur CFM56-5C.

* maille hexagonale $\|\vec{a}\| = \|\vec{b}\| = 2,464 \text{ Å}$, $\|\vec{c}\| = 6,711 \text{ Å}$

IV.2.1.2. Distribution en taille des particules primaires

IV.2.1.2.1. Microscopie électronique à balayage: MEB

Dans le cas de ce turboréacteur, la distribution en taille des particules primaires a été établie à partir de 5 membranes ayant des porosités différentes, les paramètres de métallisation étant identiques à ceux utilisés pour les échantillons du moteur CFM56-5C (§ IV.1.1.2.1), c'est à dire un temps de sublimation de carbone de 2 s avec une intensité de 20 A. Les distributions en taille des particules primaires établies pour les 5 membranes sont illustrées sur la Figure 47.

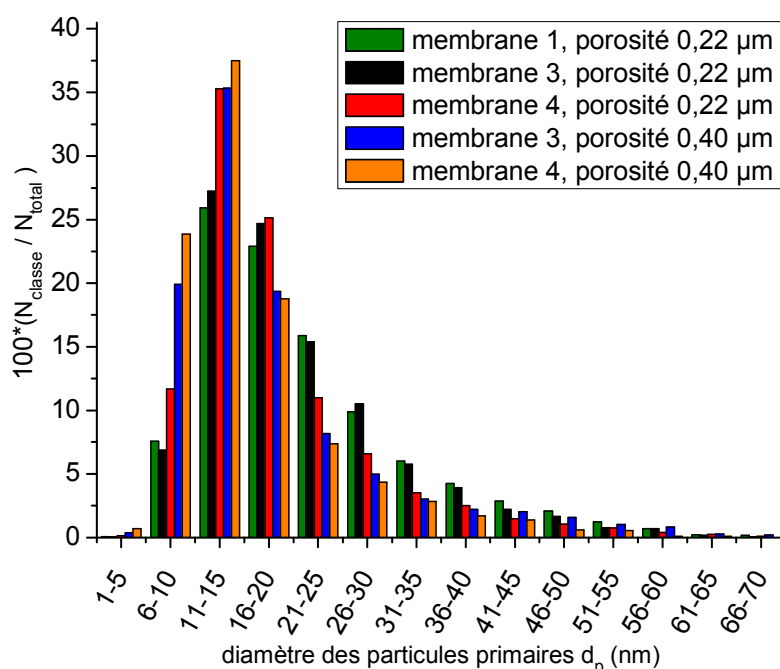


Figure 47 Comparaison des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées sur différentes membranes

Nous constatons que, quelle que soit la porosité des membranes, les distributions en taille sont de type log-normale avec une moyenne géométrique proche de 15 nm. Les données relatives à ces distributions sont reportées dans le Tableau 21.

Membrane (n°)	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2	Porosité de la membrane (μm)
3	12,0	35,12	0,39	2229	37	0,9882	0,40
4	11,6	38,52	0,38	2045	37	0,9933	0,40
1	15,2	25,64	0,45	2696	37	0,9897	0,22
3	15,3	27,42	0,42	2453	37	0,9896	0,22
4	13,6	34,67	0,37	2311	37	0,9910	0,22

Tableau 21 Données relatives aux distributions en taille des particules primaires de suie déterminées par MEB(moteur CFM56-5B)

Les prélèvements derrière le moteur CFM56-5B ont été réalisés au cours d'une même journée pour laquelle les données de températures et d'humidité relative de l'air alimentant le moteur sont indiquées dans le Tableau 22.

Jour de collecte	Air d'entrée moteur	
	T (°C)	RH (%)
Début de collecte	10,4	79
Fin de collecte	7,7	91

Tableau 22 Paramètres de l'air admis dans le moteur CFM56-5B lors de la collecte durant les cycles décollage/atterrissage de type II

La distribution en taille, établie à partir de 11734 particules primaires de suie observées par MEB, est illustrée sur la Figure 48 et ses paramètres sont donnés dans le Tableau 23. Cette distribution, représentative des émissions du moteur CFM56-5B suit une loi log-normale, comme cela était déjà le cas pour les émissions du moteur CFM56-5C. Cependant, la valeur de la moyenne géométrique correspond à un diamètre de $13,4 \pm 0,2$ nm tandis qu'elle était égale à $22,5 \pm 0,2$ nm pour le turboréacteur CFM56-5C.

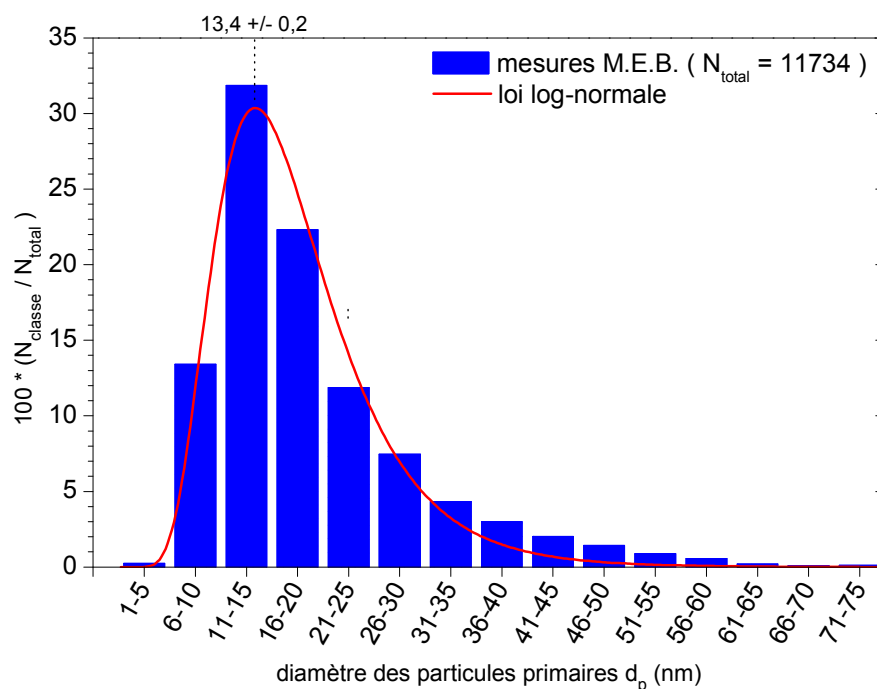


Figure 48 Distribution (MEB) en taille des particules primaires de suie collectées derrière un moteur CFM56-5B

Moteur	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
CFM56-5B	13,4	30,36	0,42	11734	37	0,9885

Tableau 23 Paramètres de la distribution MEB en taille des particules primaires de suie mesurée lors de collecte derrière un moteur CFM56-5B

IV.2.1.2.2. Microscopie électronique en transmission: MET

Nous avons également réalisé des prélèvements de suie sur des grilles de microscopie électronique (§ III.1.1.2) et des analyses MET. Les caractéristiques des distributions en taille des particules primaires établies à partir de l'analyse des images MET sont présentées dans le Tableau 24, et les courbes correspondantes sont représentées sur la Figure 49. Les quatre distributions sont très semblables et chacune d'elle présente un maximum correspondant à des diamètres moyens compris entre 8 et 12 nm.

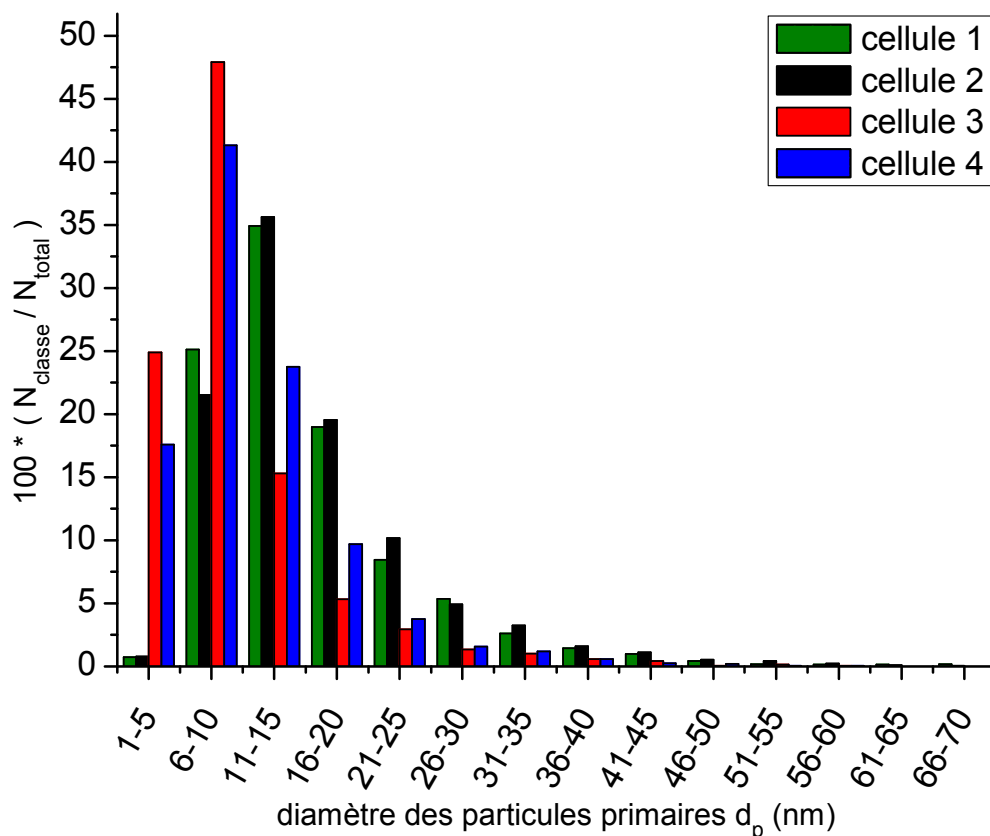


Figure 49 Distribution en taille de particules primaires de suie des quatre grilles MET mises en place lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5B

Distribution	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
Cellule 1	11,4	35,84	0,43	4479	37	0,9960
Cellule 2	11,9	35,26	0,41	4005	37	0,9939
Cellule 3	5,8	58,49	0,50	3777	37	0,9979
Cellule 4	6,6	44,21	0,59	3116	37	0,9984

Tableau 24 Paramètres des distributions en taille des particules primaires de suie des quatre grilles MET mises en place lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5B

La Figure 50 représente la distribution en taille globale des particules primaires de suie déterminée à partir des images MET. Cette distribution suit une loi de type log-normale avec une moyenne géométrique égale à $8,8 \pm 0,2$ nm. Ce résultat est proche de celui qui a été obtenu dans le cas du moteur CFM56-5C (distribution log-normale avec une moyenne géométrique égale à $9,9 \pm 0,1$ nm).

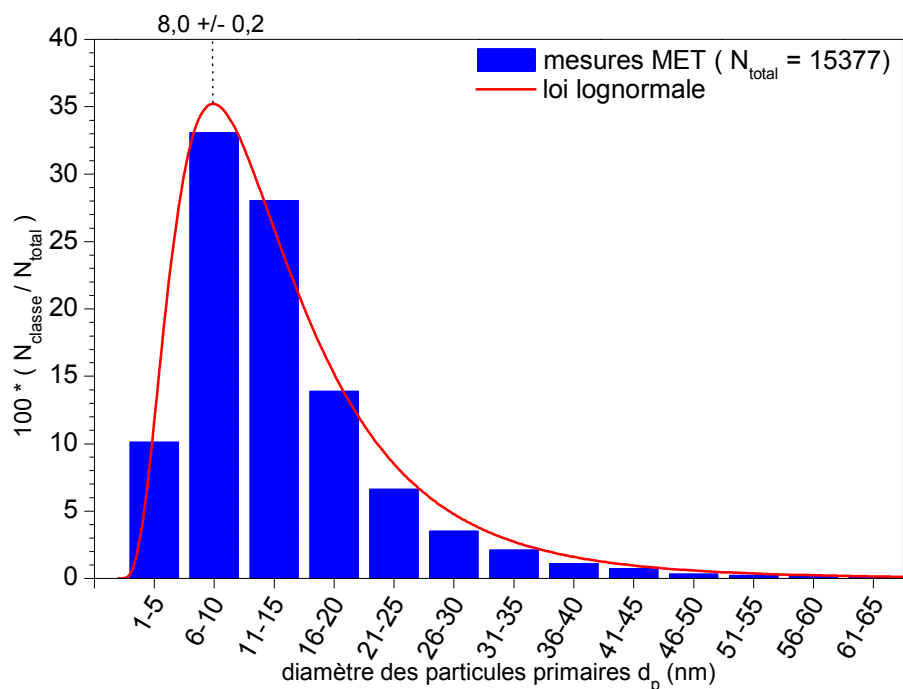


Figure 50 Distribution (MET) en taille des particules primaires de suie collectées derrière un moteur CFM56-5B

	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
CFM56-5B	8,0	35,21	0,62	15377	37	0,9905
Cellule 1	11,4	35,84	0,43	4479	37	0,9960
Cellule 1 - Grille 1	8,9	35,05	0,43	2418	37	0,9971
Cellule 1 - Grille 2	9,9	36,93	0,41	2061	37	0,9933
Cellule 2	11,9	35,26	0,41	4005	37	0,9939
Cellule 2 - Grille 1	11,4	33,80	0,45	1944	37	0,9942
Cellule 2 - Grille 2	12,3	36,77	0,39	2061	37	0,9910
Cellule 3	5,8	58,49	0,50	3777	37	0,9979
Cellule 3 - Grille 1	5,9	62,23	0,47	2069	37	0,9981
Cellule 3 - Grille 2	5,7	51,96	0,55	1708	37	0,9979
Cellule 4	6,6	44,21	0,59	3116	37	0,9984
Cellule 4 - Grille 1	9,6	42,24	0,44	1281	37	0,9991
Cellule 4 - Grille 2	5,6	52,90	0,56	1835	37	0,9997

Tableau 25 Coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie des grilles MET du premier dispositif mis en place lors de collecte derrière le moteur CFM56-5B pour des cycles décollage/atterrissage

IV.2.1.3. Comparaison des distributions de particules primaires

Comme pour l'étude des émissions de suie du moteur CFM56-5C (§ IV.1.1.3), la comparaison des distributions en taille déterminées à partir des images MEB et des images MET garde tout son sens dans la mesure où les échantillons ont été prélevés simultanément. le Tableau 26 permet de comparer les paramètres de ces distributions en taille et de mettre en évidence une différence importante sur la valeur de la moyenne géométrique. Ceci confirme les observations faites dans les études réalisées avec le turboréacteur CFM56-5C. Cette différence est illustrée sur la Figure 51 où les deux distributions log-normales présentent des maxima qui ne coïncident pas. Nous expliquons l'origine de cette différence dans le paragraphe V.1.

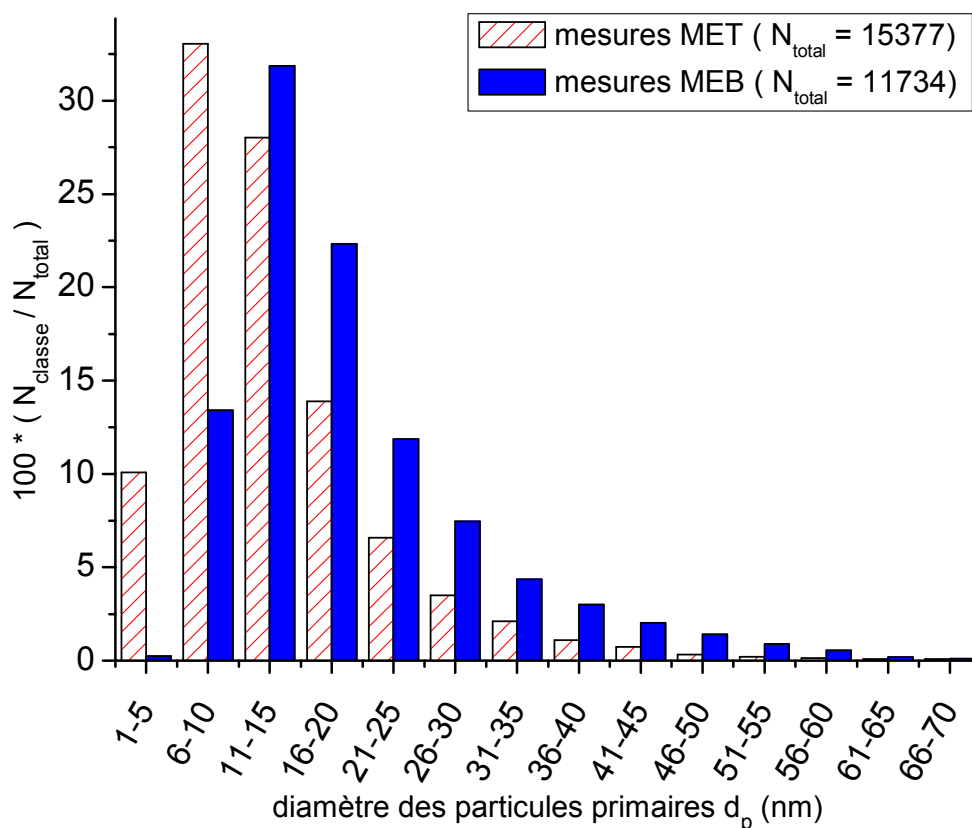


Figure 51 Comparaisons des distributions des particules primaires obtenues par MET et MEB lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5B

CFM56-6B	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
MET	8,0	35,21	0,62	15377	37	0,9905
MEB	13,4	30,36	0,42	11734	37	0,9885

Tableau 26 Paramètres des distributions en taille des particules primaires de suie obtenues lors de la collecte derrière un moteur CFM56-5B

IV.2.1.4. Etude des agrégats

IV.2.1.4.1. Nombre de particules primaires

La méthode de caractérisation des agrégats et les équations développées dans le paragraphe IV.1.1.4.1 sont appliquées dans cette partie. L'analyse conduite sur 317 agrégats avec la méthode de Neer *et al.* [Neer 2006] conduit à un nombre de particules primaires par agrégat compris entre 5 et 3500. Comme ces valeurs sont inférieures à 10000, l'application de la méthode de Meakin *et al.* [Meakin 1989] se justifie pour déterminer $k_a = 1,1519$ et $\alpha = 1,0564$ lorsque $5 \leq N \leq 3500$.

La Figure 52 représente la distribution du pourcentage d'agrégats en fonction du nombre de particules primaires les composant. Cette distribution est de type log-normale avec un maximum de probabilité pour $N = 33 \pm 3$ particules primaires, soit une valeur moitié inférieure à celle observée dans le cas du turboréacteur CFM56-5C.

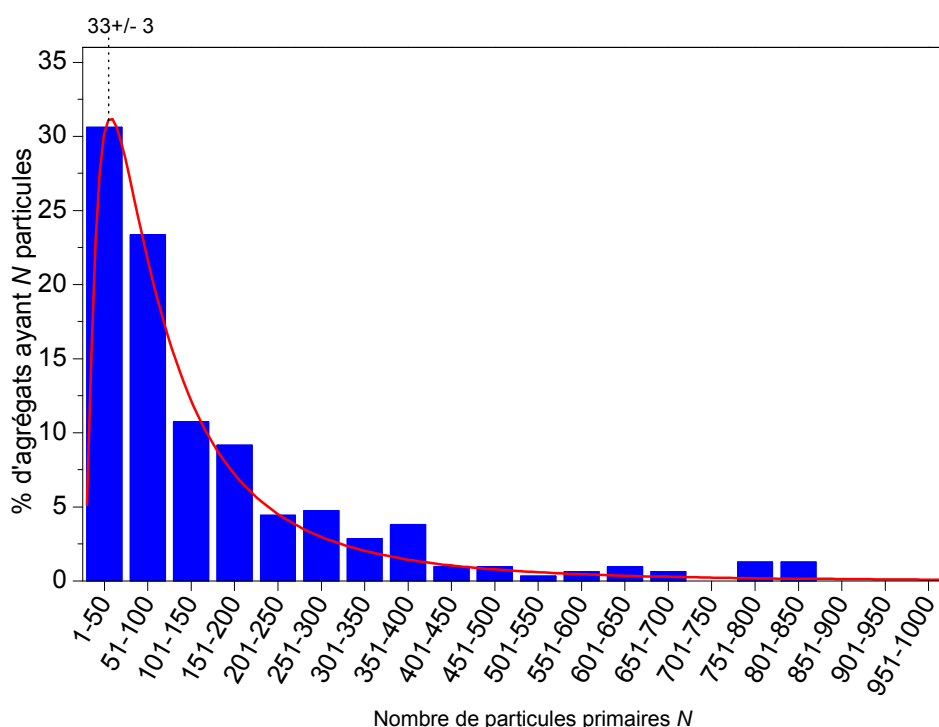


Figure 52 Distribution du nombre d'agrégat en fonction du nombre de particules primaires de suie les coconstituant, pour des suies émises par un moteur CFM56-5B

Nous pouvons constater que 75 % des agrégats sont composés de moins de 300 particules primaires (Tableau 27).

Nombre de particules primaires	≤ 100	≤ 200	≤ 300	≤ 400	≤ 500	≤ 1000
Pourcentage d'agrégats (%)	53,9	73,8	83,0	89,6	91,5	96,5

Tableau 27 Répartition du nombre de particules primaires composant les agrégats de suie observés derrière un moteur CFM56-5B

IV.2.1.4.2. Dimension fractale

En utilisant l'hypothèse de quasi-fractalité des agrégats de suie développée dans le paragraphe IV.1.1.4.2, la dimension fractale projetée $D_{f,2D}$ des agrégats est établie avec la relation (8) liant la longueur projetée maximale L de chaque agrégat au nombre N de particules primaires composant ces agrégats.

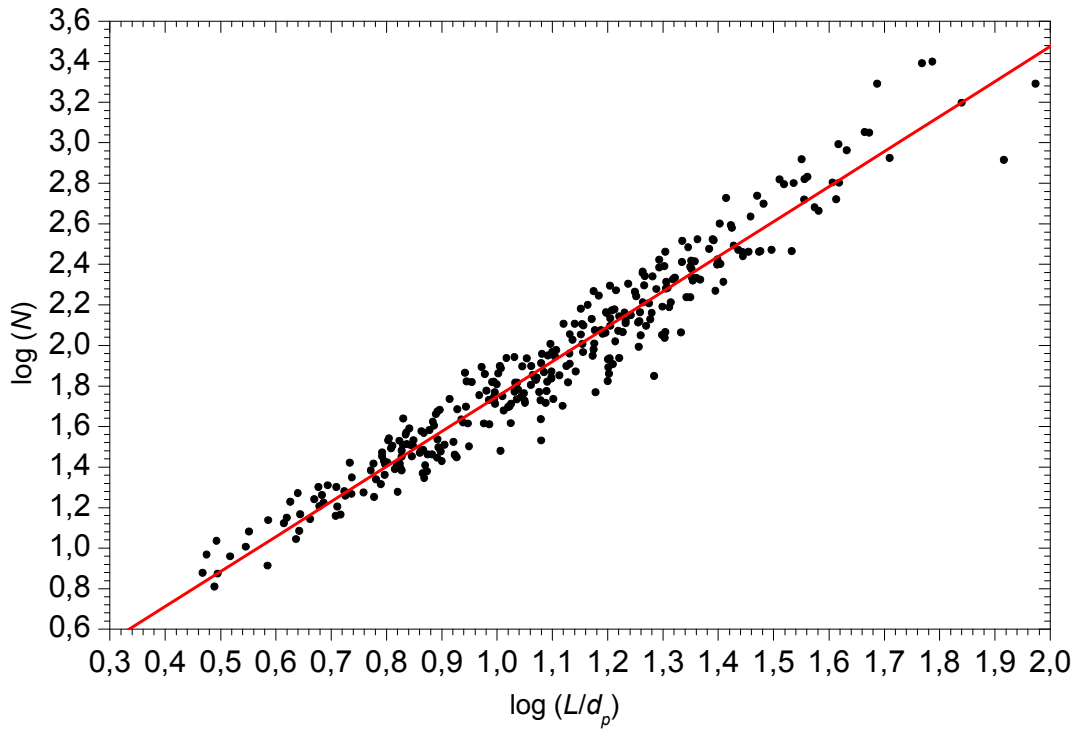


Figure 53 Détermination de la dimension fractale 2D des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5B

Pour les 317 agrégats considérés, la dimension fractale projetée $D_{f,2D}$ est égale à $1,73 \pm 0,02$ (Figure 53) et le coefficient préfractal lié à la longueur maximale vaut $k_L = 1,02 \pm 0,03$. Ces données permettent de déterminer la dimension fractale 3D $D_{f,3D} = 1,83 \pm 0,02$ et le préfacteur fractal $k_f = 1,98$. Nous pouvons remarquer que ces valeurs sont extrêmement proches de celles qui ont été établies pour les suies émises par le turboréacteur CFM56-5C (§ IV.1.1.4.2).

IV.2.1.4.3. Diamètre de giration

Pour chacun des agrégats, le diamètre de giration projeté $d_{g,2D}$ équivalent est établi avec la relation (13). La Figure 54 illustre la distribution de ces agrégats de suie en fonction de leur diamètre de giration projeté.

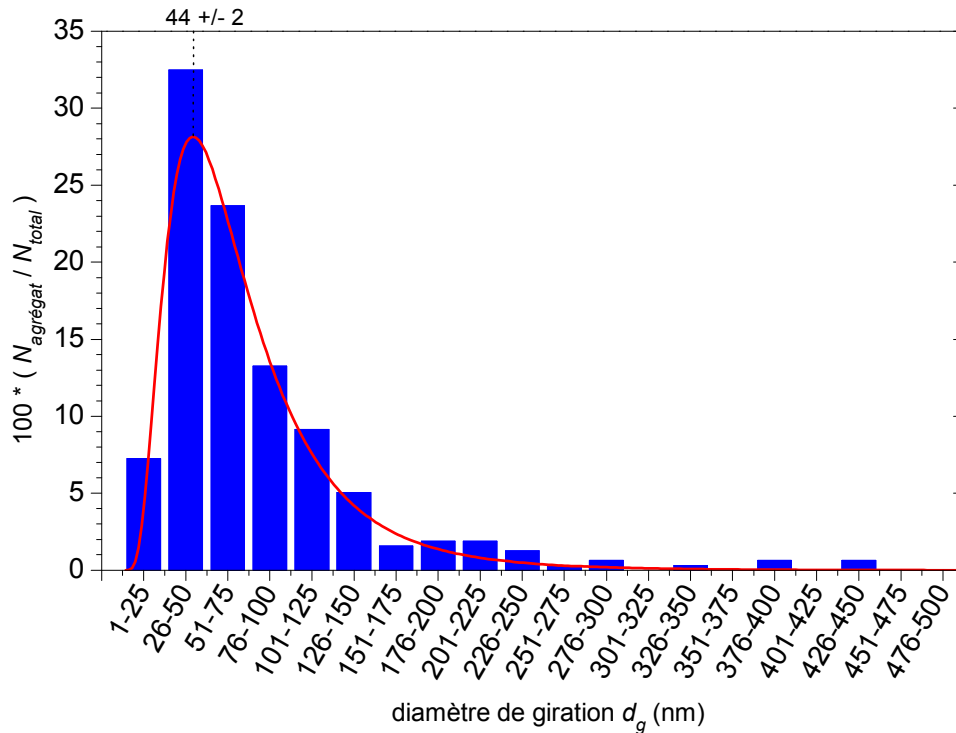


Figure 54 Distribution des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5B en fonction de leur diamètre de giration

Cette distribution suit aussi une loi log-normale, comme dans l'étude des agrégats de suie émis par le CFM56-5C, avec une moyenne géométrique correspondant à un diamètre de giration $d_{g,2D} = 44 \pm 2$ nm (Tableau 28) et un diamètre de giration $d_{g,3D} = 54 \pm 2$ nm alors que pour le moteur CFM56-5C, ils étaient respectivement égaux à $d_{g,2D} = 73 \pm 3$ nm et $d_{g,3D} = 89 \pm 4$ nm.

Moteur	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	R^2
CFM56-5B	44	28,16	0,61	317	0,9920

Tableau 28 Paramètres de la distribution des agrégats de suie collectés derrière un moteur CFM56-5B en fonction de leur diamètre de giration

IV.2.2. Caractérisation chimique

IV.2.2.1. Spectrométrie de rayons X

Des analyses par spectrométrie de rayons X ont été effectués sur les agrégats de suie observés par MET. La Figure 55 montre un spectre représentatif de ces analyses. Les éléments présents sont essentiellement (en pourcentage atomique) le carbone : 97 ± 3 % ; l'oxygène : 3 ± 3 % et le soufre : $0,6 \pm 0,6$ % (Tableau 29). Les signaux de cuivre sont dûs au maillage supportant le film de carbone amorphe troué (grille MET). La présence de silicium provient d'un résidu de fabrication des membranes en carbone qui recouvre la grille MET.

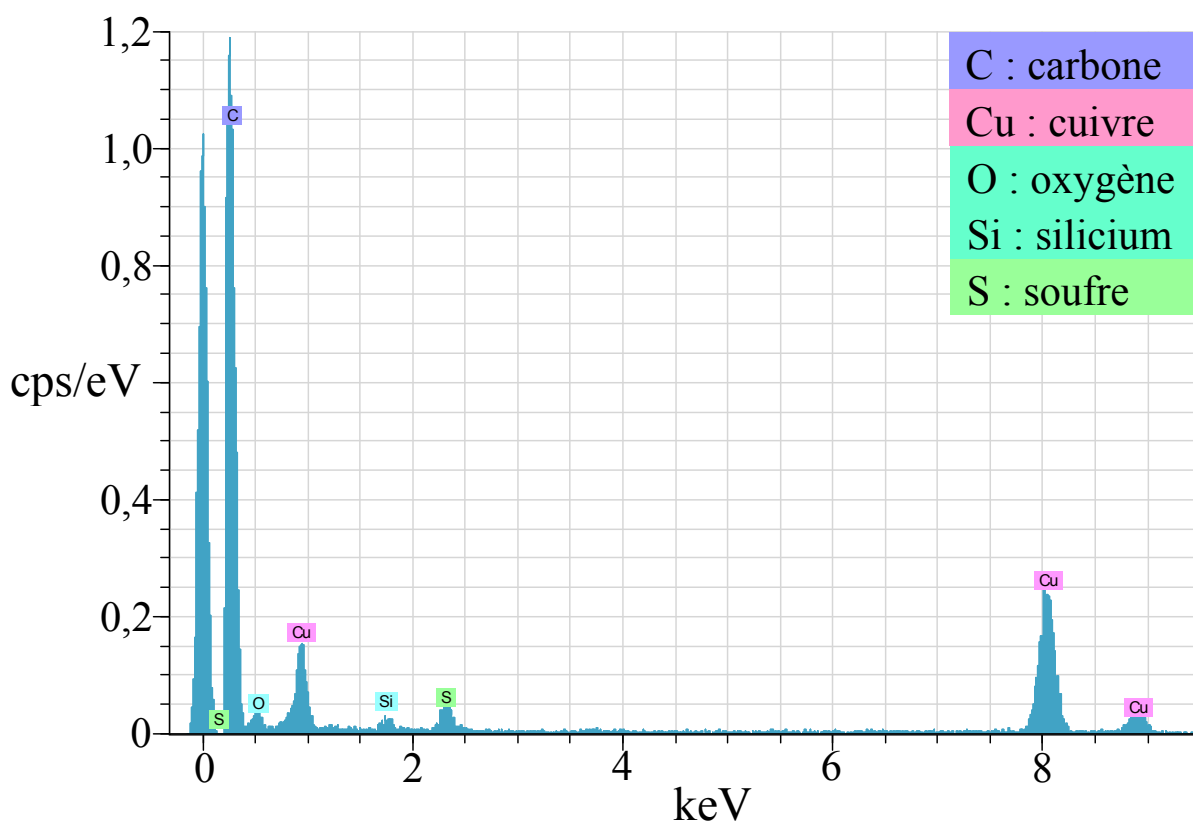


Figure 55 Spectre d'analyse chimique élémentaire d'un agrégat de suie

Objet observé	Paramètres d'analyse		Elément chimique (en atome)		
	Référence	Temps d'accumulation (s)	C (%)	O (%)	S (%)
Suie	Carbone	100	97,11	1,56	1,33
Suie	Carbone	100	94,46	5,19	0,34
Suie	Carbone	100	98,80	1,11	0,09
Suie	Carbone	100	96,97	2,74	0,29

Tableau 29 Analyse chimique élémentaire par micro-analyse X d'échantillons issus du moteur CFM56-5B

IV.2.2.2. Spectroscopie infrarouge

Un spectre infrarouge de la suie émise par le moteur CFM56-5B est présenté sur la Figure 56, les caractéristiques vibrationnelles de l'huile et du support en silicium ayant été éliminées. Ce spectre est similaire à celui observé pour les suies émises par le turboréacteur CFM56-5C précédemment étudié (§ IV.1.2.2). Nous constatons la présence de signaux correspondant aux fonctions alcools libres et associées ($3000-3300\text{ cm}^{-1}$), carbonyles (1750 cm^{-1}) et alcanes ($2800-3000\text{ cm}^{-1}$). Il est intéressant de noter qu'entre 400 et 900 cm^{-1} , il y a beaucoup plus de contributions que dans le cas des suies du CFM56-5C. Cela rend difficile l'identification des fonctions impliquées mais il est probable que des fonctions sulfures ($500-750\text{ cm}^{-1}$) et disulfures ($500-550\text{ cm}^{-1}$) soient présentes. L'ensemble des fonctions chimiques concorde parfaitement avec les mesures obtenues par micro-analyse X. Les fonctions alcools libres peuvent être associées aux fonctions carbonyles pour établir la fonction acide carboxylique et les groupes CH_2 et CH_3 peuvent correspondre à la structure graphitique imparfaite des suies et à des molécules adsorbées à la surface des suies (imbrûlé,...).

En plus des fenêtres en silicium, des fenêtres en germanium ont été exposées aux émissions du moteur CFM56-5B afin de s'assurer que le spectre infrarouge de la suie n'est pas affecté par la nature du support de collection utilisé. Le silicium et le germanium sont des matériaux chimiquement inertes qui présentent tous les deux de bons coefficients de transmission dans l'infrarouge moyen. Les spectres obtenus avec les fenêtres en germanium sont comparables à ceux mesurés avec les cellules en silicium mais, lors du nettoyage de la fenêtre de germanium avec un solvant organique tel que l'acétone, un dépôt résiduel persiste, même en appliquant un frottement énergétique. Ce phénomène n'est pas constaté avec les cellules en silicium. Il peut être attribué à un effet d'érosion provoqué par l'impact de particules et de gouttelettes à de fortes vitesses ($> 1\text{ m.s}^{-1}$), [Field 1995], [Gardette 1985].

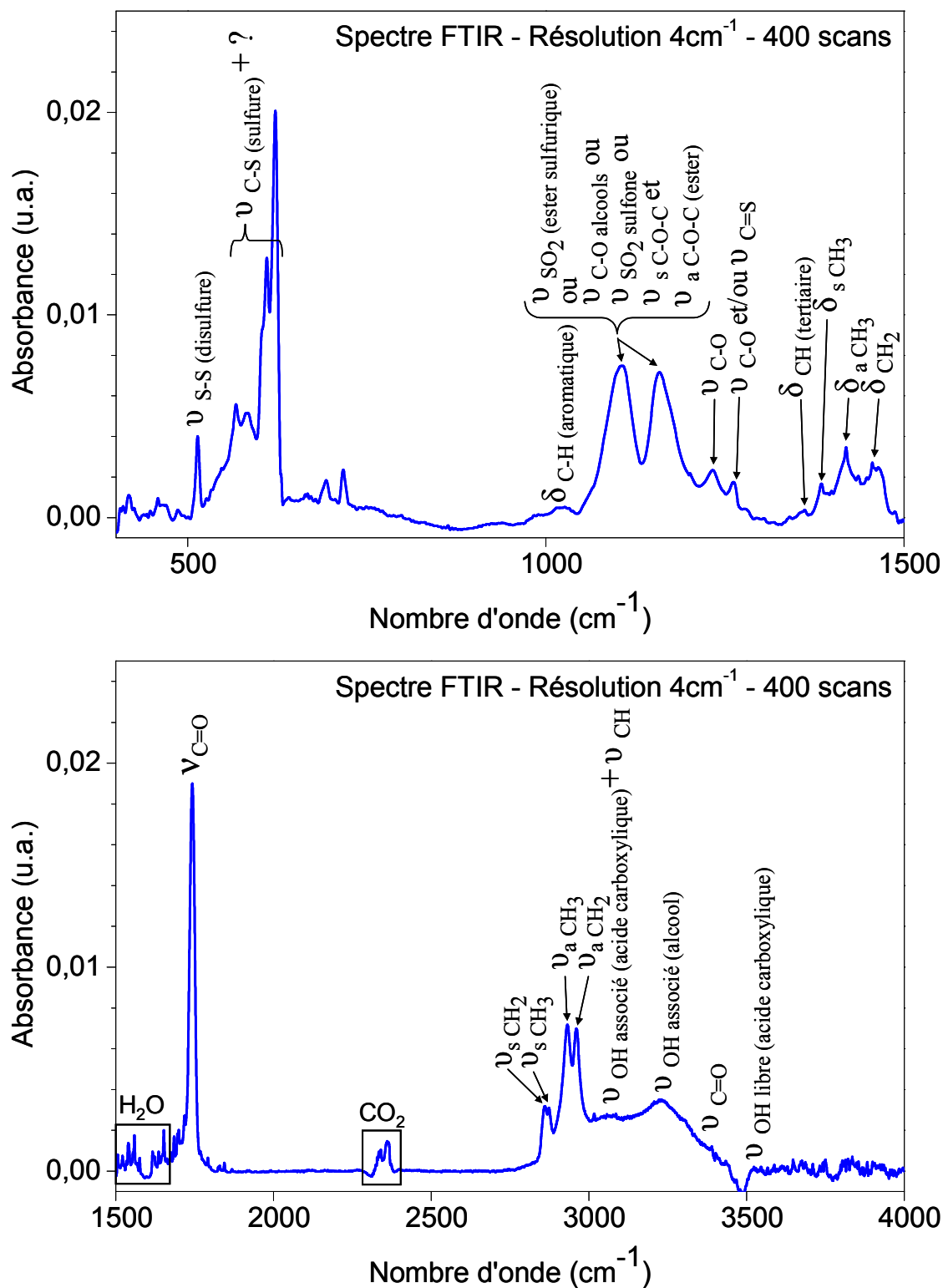


Figure 56 Spectre infrarouge de la suie émise par un moteur CFM56-5B après soustraction du signal de l'huile (avec ν_a : vibration de valence asymétrique, ν_s : vibration de valence symétrique, δ_a : vibration de déformation asymétrique et δ_s : vibration de déformation symétrique)

IV.2.2.3. Chromatographie

Des analyses par chromatographie ont été menées afin de rechercher la présence éventuelle de HAP résiduels. Pour ce faire, nous avons d'abord effectué des mesures de variation de masse. Les pesées des filtres en fibres de verre (GFF) n'ont révélé aucune valeur négative de variation de masse et les résultats sont assez homogènes (Tableau 30) mais proches des limites de mesure. Il faut noter que la précision des pesées est fonction du type de balance utilisée et que dans notre cas elle est de $\pm 0,2$ mg.

Type de filtre	GFF
Nombre de cycles	37
Nombre de filtre	6
Variation de masse du filtre (mg)	$0,6 \pm 0,4$
Variabilité des mesures de masses(%)	67
Masse totale de HAP (ng)	7 à 20 ± 7

Tableau 30 Variation de masse des filtres en fibres de verre

Les analyses effectuées sur les filtres en fibres de verre GFF indiquent une présence de quelques nanogrammes de HAP dans les échantillons de suie (suie + huile + carburant). Le pyrène (CAS n°12900-0) et le fluoranthène (CAS n°206-44-0) sont les molécules prédominantes.

IV.3. Synthèse des résultats expérimentaux

La synthèse de l'ensemble des données expérimentales déterminées sur les échantillons de suie provenant des moteurs CFM56-5C et CFM56-5B, est donnée dans le tableau ci-dessous :

Conditions	Moteur	CFM56-5C	CFM56-5B
	Cycle	Type I	Type II
	Durée relative d'un cycle	1,00	0,68
	Nombre de cycle étudiés	16 - 21 -26	37
Particules primaires	Morphologie	Sphérique	Sphérique
	Structure	Turbostratique	Turbostratique
	Distances réticulaires (Å)	$d_{002} = 3,8 \pm 0,2$ $d_{10} = 2,15 \pm 0,07$ $d_{11} = 1,25 \pm 0,02$	$d_{002} = 4,2 \pm 0,2$ $d_{10} = 2,27 \pm 0,10$ $d_{11} = 1,32 \pm 0,03$
	Distribution en diamètre (d_p) par MEB (nm)	log-normale $\bar{d}_p = 22,5 \pm 0,2$	log-normale $\bar{d}_p = 13,4 \pm 0,2$
	Distribution en diamètre (d_p) par MET (nm)	log-normale $\bar{d}_p = 9,9 \pm 0,1$	log-normale $\bar{d}_p = 8,0 \pm 0,2$
Agrégats	Dimension fractale (D_f)	$D_{f,2D} = 1,83 \pm 0,05$ $D_{f,3D} = 1,91 \pm 0,05$	$D_{f,2D} = 1,73 \pm 0,02$ $D_{f,3D} = 1,83 \pm 0,02$
	Coefficient préfacteur fractal (k_L)	$k_L = 1,062$	$k_L = 1,021$
	Distribution en nombre de particules primaires (N)	log-normale $\bar{N} = 66 \pm 3$ 75% avec $N < 500$	log-normale $\bar{N} = 33 \pm 3$ 75% avec $N < 300$
	Distribution en diamètre de giration (d_g) (nm)	log-normale $\bar{d}_{g,2D} = 73 \pm 3$ $\bar{d}_{g,3D} = 89 \pm 4$	log-normale $\bar{d}_{g,2D} = 44 \pm 2$ $\bar{d}_{g,3D} = 54 \pm 2$
Chimie	Composition chimique élémentaire (% atomique)	C : 98 ± 3 O : $1,5 \pm 0,4$ S : $0,12 \pm 0,05$	C : 97 ± 3 O : 3 ± 3 S : $0,6 \pm 0,6$
	Fonctions chimiques surfaciques	Alcanes, carbonyle, alcool libre et lié, soufre, disulfure	Alcanes, carbonyle, alcool libre et lié, soufre, disulfure
	HAP majoritaires (présence résiduelle)	Pyrène (CAS n°129-00-0), fluoranthène (CAS n°206-44-0), phénanthrène (CAS n°97193-05-0)	Pyrène (CAS n°129-00-0), fluoranthène (CAS n°206-44-0)

Tableau 31 Synthèse des données expérimentales établies sur les échantillons de suie émis par les turboréacteurs CFM56-5C et CFM56-5B

V. ANALYSE ET DISCUSSION DES RÉSULTATS

V.1. Influence et conséquence de la préparation des échantillons sur la mesure de la taille des particules en microscopie électronique à balayage

Les Figure 57 et Figure 58 présentent les distributions en taille de particules primaires de mêmes échantillons de suie, établies à partir de l'analyse des clichés MEB et MET. Dans les deux cas, les distributions suivent une loi log-normale mais leurs moyennes géométriques leurs écart-types sont différents (Tableau 32).

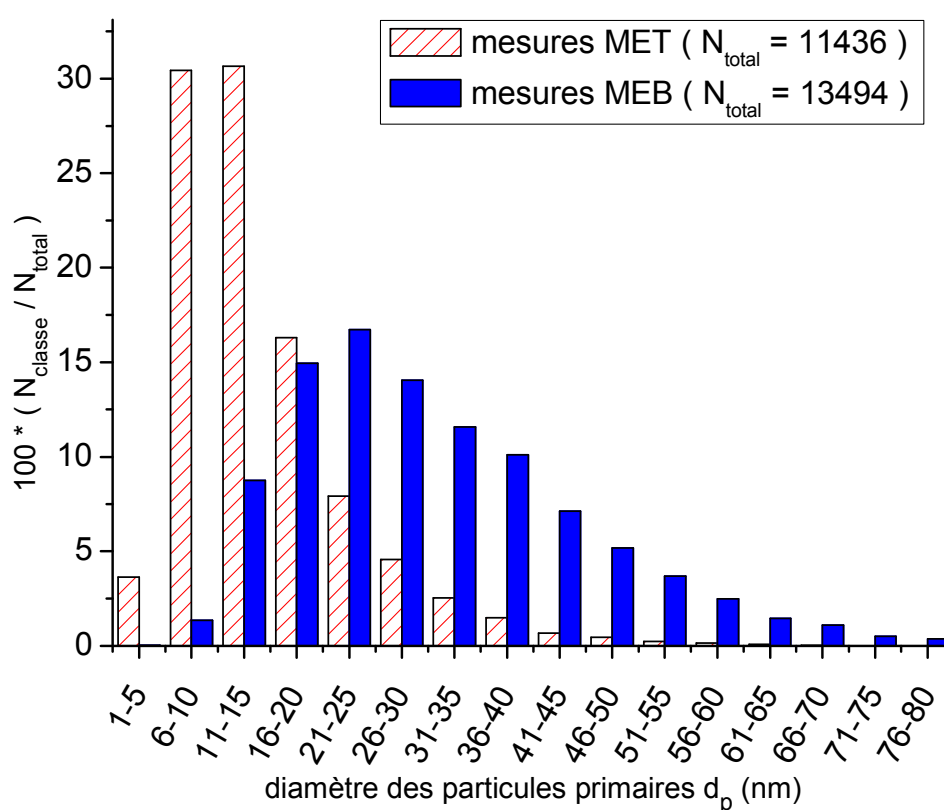


Figure 57 Comparaison des distributions en taille de particules primaires collectées derrière un moteur CFM56-5C, établies à partir de clichés MET et MEB

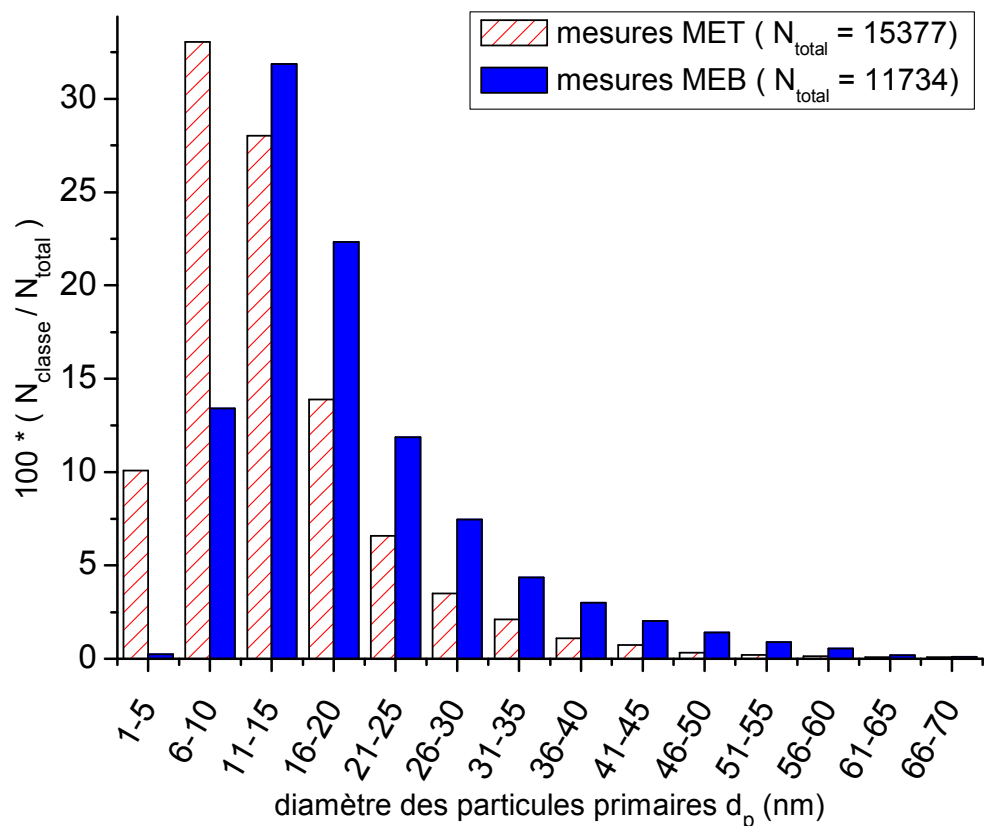


Figure 58 Comparaison des distributions en taille des particules primaires collectées derrière un moteur CFM56-5B, établies à partir de clichés MET et MEB

	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
CFM56-5C MET	9,9	34,20	0,51	11346	21	0,9967
CFM56-5C MEB	22,5	16,49	0,49	13494	16-26-21	0,9963
CFM56-5B MET	8,0	35,21	0,62	15377	37	0,9905
CFM56-5B MEB	13,4	30,36	0,42	11734	37	0,9885

Tableau 32 Paramètres des distributions en taille des particules primaires collectées derrière les moteurs CFM56-5C et CFM56-5B

Les différences observées sont liées à la préparation des échantillons étudiés. En effet, à la différence des grilles MET, les membranes en polycarbonate utilisées pour les analyses en MEB nécessitent une métallisation préalablement à l'observation car elles ne sont pas électriquement conductrices. Cette étape de préparation consiste à réaliser un dépôt de carbone amorphe conducteur sur l'ensemble de l'échantillon par sublimation d'un barreau de graphite dans lequel passe courant électrique de grande intensité. Nous avons utilisé un sublimateur EMITECH K950X pour effectuer ce dépôt de carbone amorphe.

La Figure 59 illustre, de manière non exhaustive, la manière dont le dépôt d'un film de carbone amorphe peut s'effectuer sur les particules de suie et affecter la forme des particules et des agrégats de suie. Cela engendre un biais sur la détermination du diamètre des particules élémentaires observées. Le recouvrement des suies par le matériau conducteur peut-être uniforme. Il s'agit alors du cas idéal où le diamètre des particules primaires de suie augmente proportionnellement à la quantité de matière sublimée. Mais ce recouvrement peut aussi être préférentiel et favoriser l'accumulation de matière sur le dessus et/ou entre les particules. Il en résulte alors une variation non linéaire du diamètre des particules primaires de suie lorsque la quantité de matière sublimée augmente. Les distributions en taille du diamètre des particules primaires de suie présentent alors une largeur à mi-hauteur plus grande que celle correspondant au cas où le recouvrement est uniforme. En effet, le fait qu'il y ait des zones préférentielles de dépôt conduira à une modification de la répartition des diamètres mesurés, ainsi qu'à un élargissement de la gamme des diamètres mesurés. Enfin, le dernier cas envisageable est celui où le recouvrement en matériau conducteur est aléatoire, ne permettant pas de relier les conditions opératoires de métallisation à la variation de diamètre des particules primaires. Dans ce cas, les distributions en taille des particules primaires de suie seront aussi affectées de manière aléatoire.

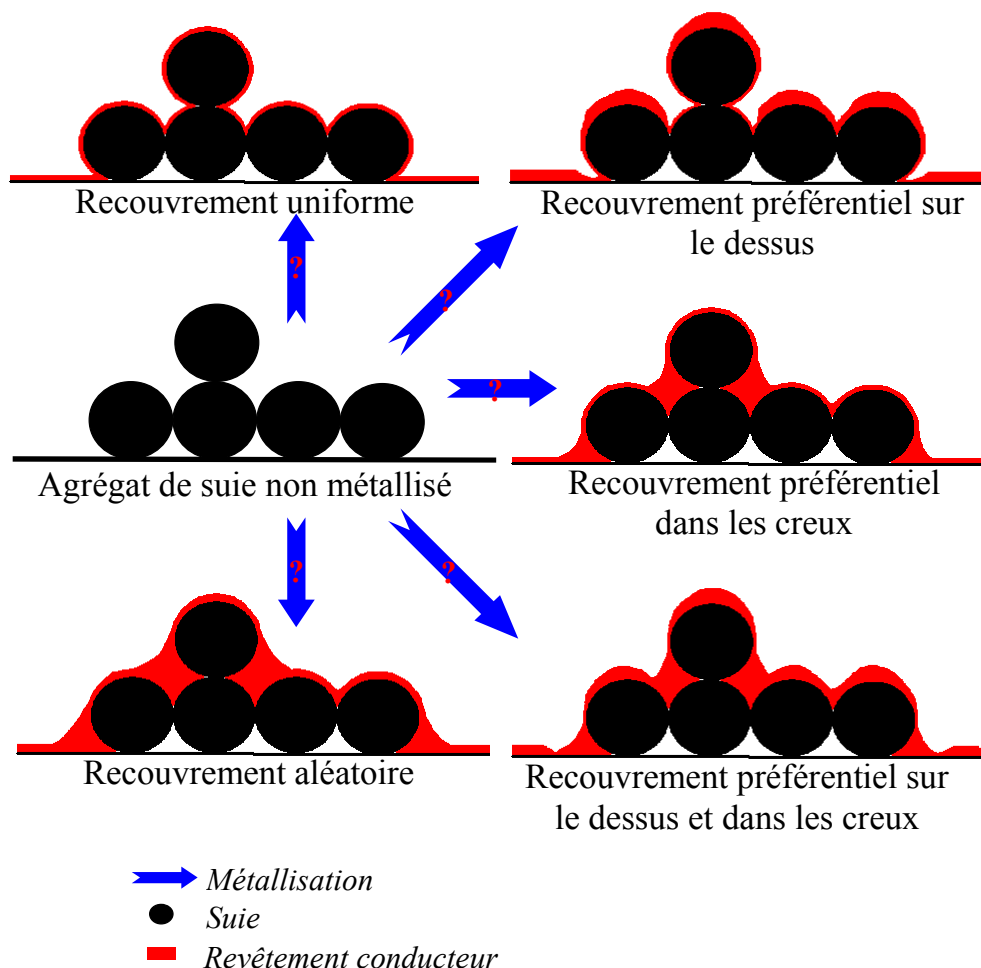


Figure 59 Conséquence du processus de métallisation sur la forme des agrégats de suie

Afin d'évaluer l'impact de cette métallisation sur les distributions en taille des particules primaires de suie, nous avons étudié l'effet de la variation du temps de sublimation (1 s, 2 s et 3 s) et de l'intensité de sublimation (17 A, 20 A et 23 A) sur les caractéristiques de ces distributions, établies pour un même échantillon.

V.1.1. Temps de sublimation

Le Tableau 33 regroupe les paramètres des distributions en taille des particules primaires de suie, établies pour une intensité fixée à 20 A et différents temps de sublimation appliqués à trois échantillons provenant d'une même membrane. Ce travail a été mené sur 3 membranes pour chacun des moteurs.

Moteur	Temps de sublimation (s)	Membrane (n°)	Porosité (μm)	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	R^2
CFM56-5C	1	10	0,22	18,1	26,16	0,39	1386	0,9883
		7	0,40	21,5	23,84	0,36	2050	0,9980
		9	0,40	21,6	23,08	0,37	2441	0,9950
	1,5	9	0,40	21,7	18,52	0,46	2874	0,9866
	2	10	0,22	20,7	20,64	0,43	1496	0,9815
		7	0,40	23,7	21,01	0,37	2279	0,9890
		9	0,40	31,4	15,44	0,38	2179	0,9819
	3	10	0,22	23,0	18,39	0,43	1384	0,9871
		7	0,40	26,6	17,73	0,39	1961	0,9815
		9	0,40	34,7	13,98	0,39	2101	0,9861
	1 + 1	10	0,22	20,0	24,13	0,38	1660	0,9890
		7	0,40	23,0	21,99	0,37	2031	0,9874
	1 + 1 + 1	10	0,22	21,0	24,42	0,36	1812	0,9953
		7	0,40	23,4	22,01	0,36	1966	0,9884
CFM56-5B	1	1	0,22	12,5	37,10	0,38	2525	0,9981
		3	0,22	11,7	42,95	0,35	1971	0,9964
		4	0,22	10,9	49,03	0,33	3053	0,9974
	2	1	0,22	15,2	25,64	0,45	2696	0,9897
		3	0,22	15,3	27,42	0,42	2453	0,9896
		4	0,22	13,6	34,67	0,37	2311	0,9910
	3	1	0,22	12,6	36,23	0,38	3068	0,9942
		3	0,22	10,8	41,21	0,38	2767	0,9993
		4	0,22	10,4	48,75	0,33	2903	0,9980

Tableau 33 Etude de l'effet du temps de métallisation sur les paramètres des distributions en taille des particules primaires de suie

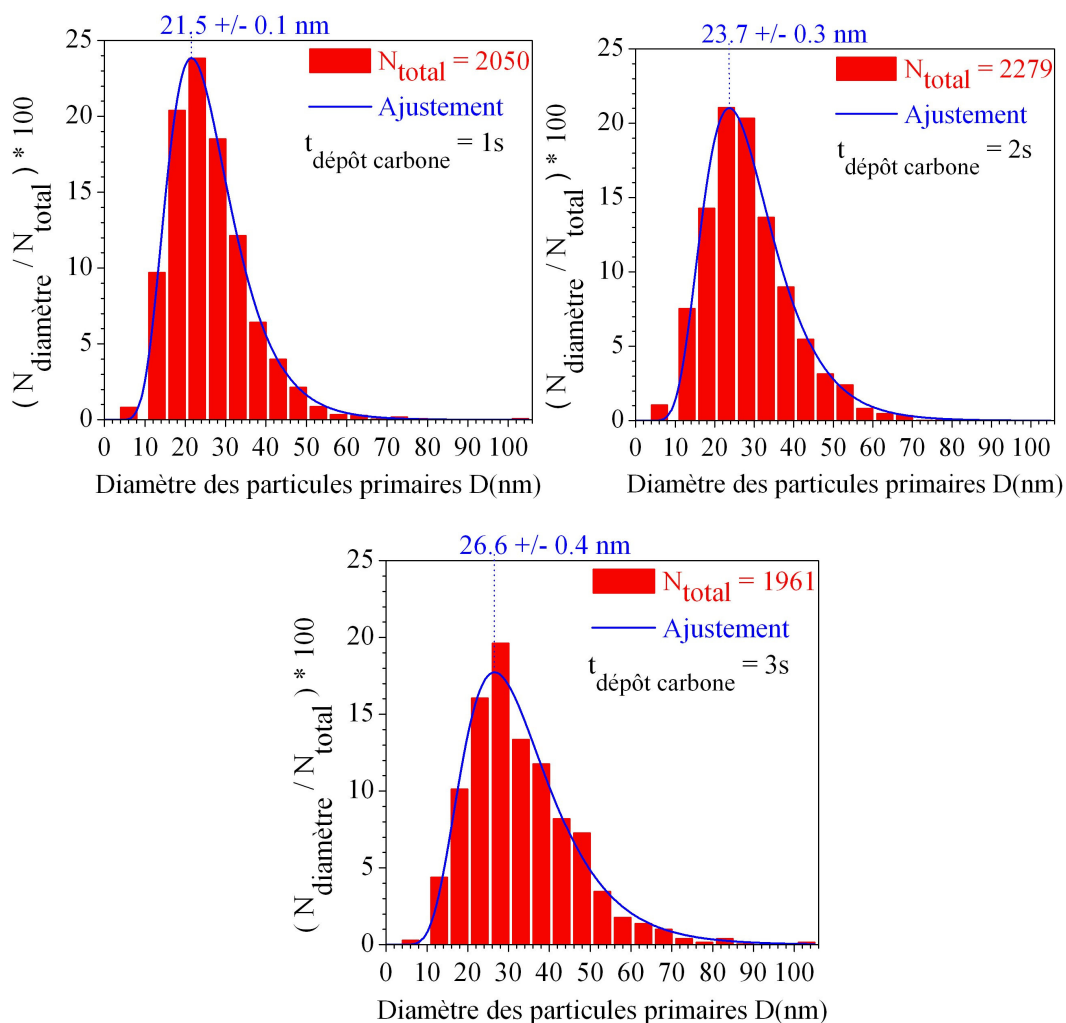


Figure 60 Effet du temps de dépôt de carbone (métallisation de l'échantillon) sur la distribution en taille des particules primaires de suie déterminée à partir de clichés MEB

Dans tous les cas, les distributions établies sont de type log-normal. Pour illustrer ce fait, la Figure 60 représente les distributions en taille des particules primaires déterminées à partir d'un même échantillon (la membrane 7) pour 3 temps de sublimations différents. Afin de mieux apprécier l'impact du temps de métallisation sur la taille des particules primaires de suie, la valeur de la moyenne géométrique de chaque distribution est reportée en fonction du temps de sublimation sur la Figure 61.

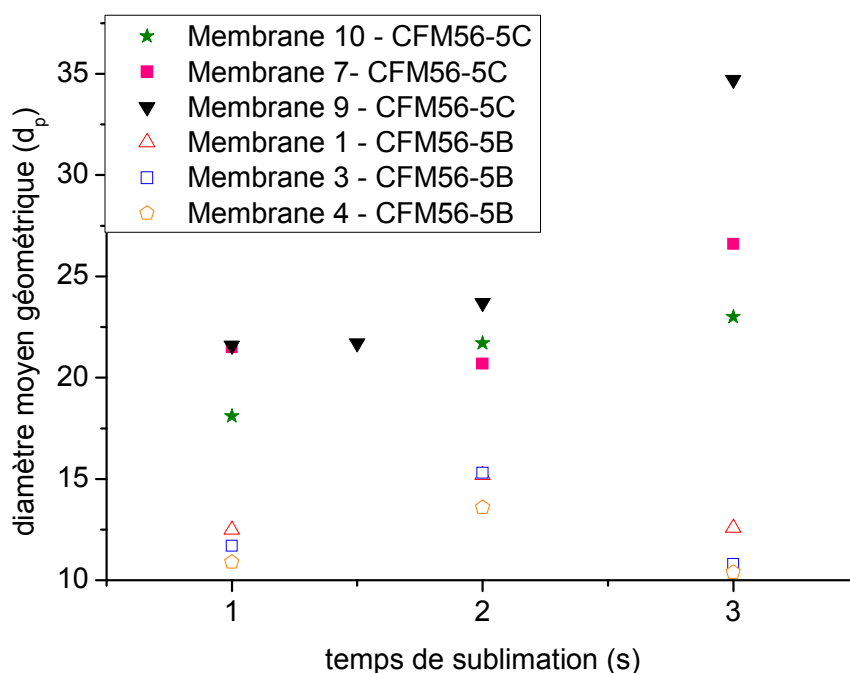


Figure 61 Influence du temps de métallisation sur la distribution en taille des particules primaires de suie : (a) cas des échantillons prélevés derrière le moteur CFM56-5C, b) cas des échantillons prélevés derrière le moteur CFM56-5B

Pour les échantillons prélevés derrière le moteur CFM56-5C, les valeurs de la moyenne géométrique a_1 et de l'écart-type a_2 des distributions en taille augmentent avec le temps de sublimation, ce qui est conforme aux attentes. En effet, lorsque le temps de sublimation augmente, il y a sublimation et dépôt sur l'échantillon d'une quantité de carbone de plus en plus importante. Cependant, il ne semble pas que le temps de sublimation et la valeur du diamètre moyen géométrique des particules primaires de suie soient liés par une loi bien définie. Dans le cas de la membrane 10, l'évolution de ce diamètre moyen est logarithmique, alors qu'elle est exponentielle dans les cas des membranes 7 et 9.

Les échantillons prélevés derrière le moteur CFM56-5B montrent une variation de la moyenne géométrique a_1 et de l'écart-type a_2 des distributions en taille qui est différente des cas précédents (CFM56-5C) puisqu'elle fait apparaître un maximum lorsque le temps de sublimation varie (à intensité constante).

Nous avons également étudié l'effet de *i*) deux métallisations successives d'une seconde et *ii*) trois métallisations successives d'une seconde (Tableau 33, Figure 62) sur les paramètres de la distribution en taille des particules, par rapport à des temps de métallisation globaux de 2 s et 3 s respectivement. Les valeurs de la moyenne géométrique a_1 des distributions en taille obtenues pour la « double » métallisation d'une seconde (1 + 1) sont équivalentes à celles résultant de la métallisation de 2 s. La « triple » métallisation (1 + 1 + 1) conduit à des valeurs de la moyenne géométrique et à des écart-types des distributions en taille qui ne correspondent pas à ceux déterminés après une métallisation de 3 s, mais au contraire à ceux des distributions en taille obtenues après une métallisation de 2 s.

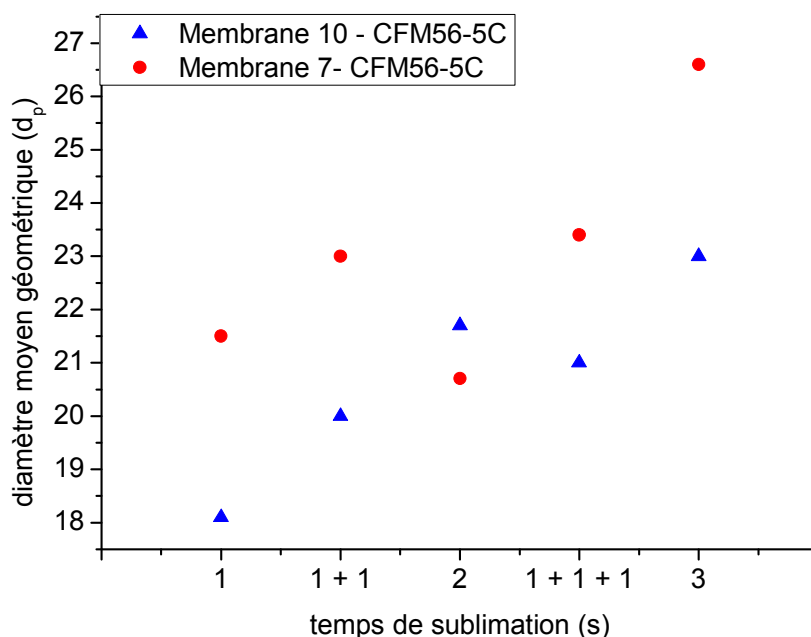


Figure 62 Influence de la répétition du processus de métallisation sur la valeur du diamètre moyen géométrique

L'ensemble de nos observations montre que les valeurs de la moyenne géométrique a_1 et de l'écart-type a_2 des distributions en taille ne varient pas de façon linéaire avec le temps de sublimation, à intensité constante.

V.1.2. Intensité de sublimation

Lors de la procédure de métallisation, l'intensité du courant électrique qui traverse le barreau de graphite afin de le chauffer par effet Joule peut être ajustée. Nous avons donc étudié l'effet d'une variation de cette intensité sur les paramètres de la distribution en taille des particules primaires, pour un temps de métallisation donné. Comme pour l'étude précédente, trois intensités différentes ont été appliquées pour des échantillons provenant d'une même membrane et pour un temps de sublimation fixé à 1 s.

Moteur	Intensité de sublimation (A)	Membrane (n°)	Porosité (μm)	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2	N_{total}	R^2
CFM56-5B	17	1	0,22	10,6	43,91	0,37	2380	0,9965
		3	0,22	10,4	46,81	0,36	3192	0,9967
		4	0,22	10,3	46,75	0,36	2123	0,9961
	20	1	0,22	15,2	25,64	0,45	2696	0,9897
		3	0,22	15,3	27,42	0,42	2453	0,9896
		4	0,22	13,6	34,67	0,37	2311	0,9910
	23	1	0,22	9,8	46,20	0,36	2000	0,9991
		3	0,22	11,0	48,09	0,34	2543	0,9981
		4	0,22	10,9	49,03	0,33	2279	0,9974

Tableau 34 Paramètres des distributions en taille des particules primaires de suie obtenues après métallisation à différentes intensités : 17A, 20A et 23A

Le Tableau 34 rassemble les paramètres des distributions en taille des particules primaires de suie établies en fonction des intensités pour chacune des trois membranes. Dans tous les cas, les distributions déterminées suivent une loi de type log-normale. La variation de l'intensité appliquée fait apparaître un maximum de la valeur de la moyenne géométrique a_1 et de l'écart-type a_2 des distributions en taille pour une intensité de 20 A (Figure 63). Cette intensité de 20 A correspond à la recommandation du fabricant du sublimateur pour travailler avec cet appareil.

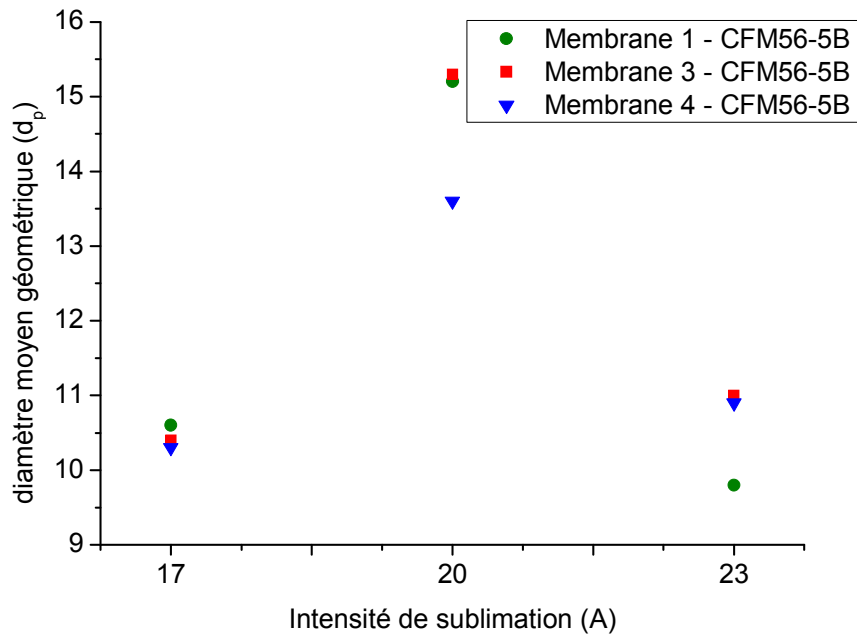


Figure 63 Influence de l'intensité de sublimation sur les distribution en taille des particules primaires de suie d'échantillons issus d'un moteur CFM56-5B

V.1.3. Conclusion

La comparaison des distributions en taille des particules primaires de suie déterminées par MEB et par MET a mis en évidence des différences notables, essentiellement dues au processus de métallisation des échantillons. L'étude de l'effet du temps de métallisation et de l'intensité appliquée a permis de montrer que les modifications sur les paramètres des distributions en taille ne sont pas forcément linéaires et reproductibles. Il est donc important de préciser les conditions de réglage du sublimateur (couple temps/intensité de sublimation) utilisées lors de la préparation d'un échantillon autant qu'il est nécessaire de faire preuve de prudence dans l'analyse et la comparaison de distributions en taille de particules obtenues par différentes techniques expérimentales, ce qui n'est malheureusement pas toujours le cas dans la littérature.

V.2. Création et validation d'une cellule spécifique de transport et de stockage des échantillons

V.2.1. Développement d'un moyen de transport et de conservation des échantillons

Les analyses physico-chimiques des suies n'étant pas pratiquées sur le site des prélèvements, il nous est apparu intéressant de développer une cellule spécifique pour la conservation et le transport des échantillons de suie, en plus du travail de caractérisation mené. En effet, il est mentionné dans la littérature que certains composés chimiques tels que les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) se dégradent relativement rapidement dans le temps [Brasseur 1999]. Le ralentissement de cette dégradation peut s'obtenir par stockage des échantillons à l'abri de la lumière, à une température $< 5^{\circ}\text{C}$, et parfois sous atmosphère inerte [Brasseur 1999], [Ruiz 2006]. Ces différentes précautions servent à limiter la sublimation et les transformations chimiques des composés. Nous avons conçu et fabriqué quatre cellules (Figure 64) qui combinent les trois techniques de conservation des HAP précédemment citées.

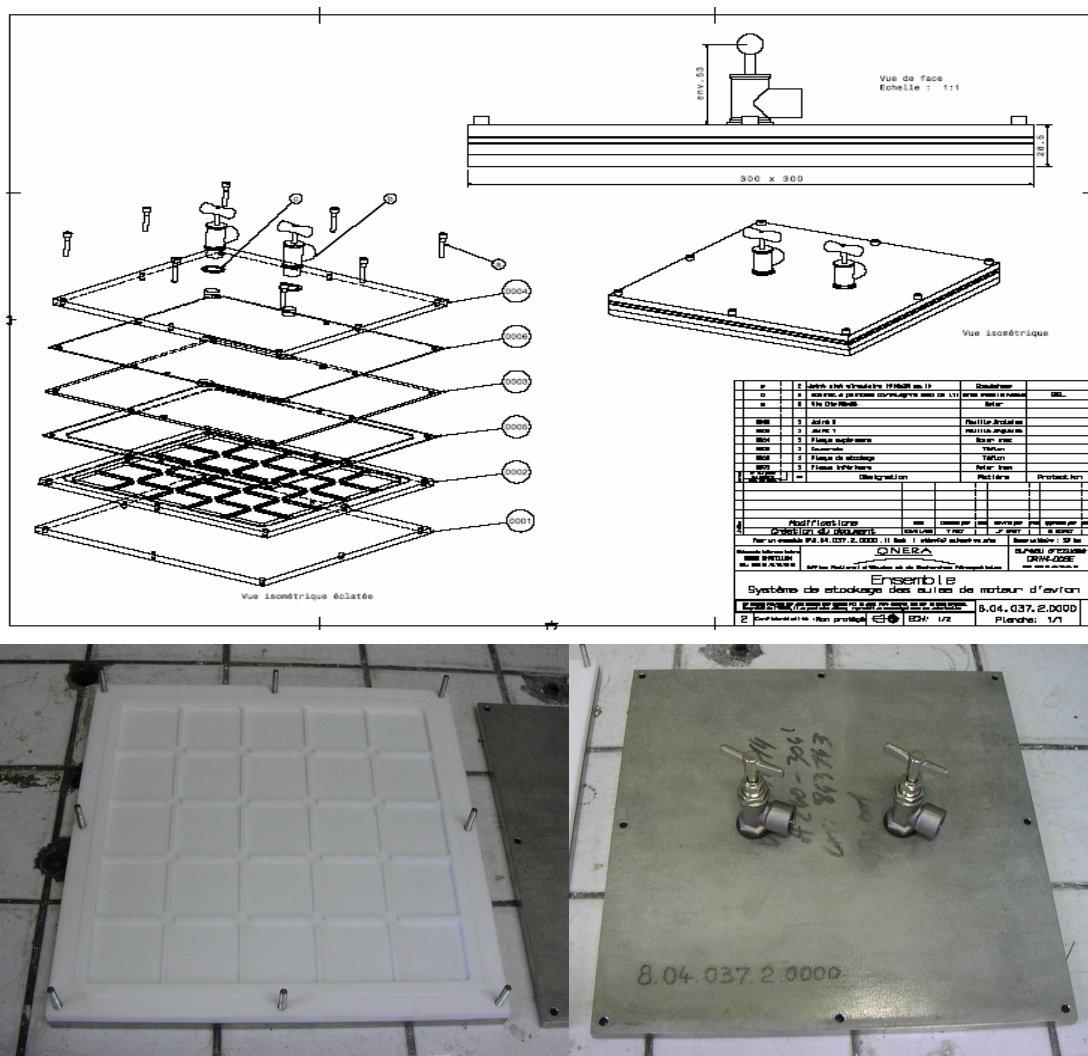


Figure 64 une cellule de stockage

V.2.2. Validation des cellules

La validation des cellules de stockage a été réalisée par l'équipe du Département Energie Fondamentale Appliquée (DEFA) de l'ONERA dans le cadre du contrat « Comité Avion et Atmosphère » (CAAT). Pour ce faire, la dégradation de deux molécules de HAP témoins, le pyrène et le fluoranthène, a été suivie par chromatographie [Ruiz 2007]. Ces composés ont été choisis parce qu'ils ont été détectés lors d'analyses chimiques fines d'échantillons de suie issus des moteurs d'avion (§ IV.3). Pour cette étude, environ 3 mg de chacun des deux HAP ont été déposés sur des filtres GFF, identiques à ceux que nous avons utilisé pour les collectes d'échantillons, et placés dans différentes configurations de stockage :

- à l'air libre et à température ambiante (20 °C)
- à l'air, mais confinés dans une cellule placée à température ambiante
- à l'air, mais confinés dans une cellule placée entre 4 et 10 °C
- à l'air, mais confinés dans une cellule placée à 2 °C
- sous atmosphère inerte d'azote, mais confinés dans une cellule placée à 2 °C

Les résultats des quatre premières configurations sont présentés sur la Figure 65. Nous pouvons remarquer qu'à l'air libre et à température ambiante, la dégradation des deux HAP, est très rapide. En quelques heures, ils ne sont plus détectables. Le fait de placer les filtres à l'abri de la lumière dans une cellule fermée, permet de retarder cette dégradation puisque la disparition complète des HAP est constatée environ 24 heures après fermeture de la cellule.

Dans le cas de filtres contenus dans une cellule placée entre 4 et 10 °C, seul le fluoranthène se dégrade encore rapidement puisqu'après 24 heures, il en reste moins de 50 % de la masse initialement déposée alors que dans le même délai, il reste plus de 75 % de la masse de pyrène initialement déposée. Le stockage des échantillons dans des cellules placées à 2 °C accroît encore la conservation des deux HAP puisqu'après 24 h, plus de 75 % de la masse initiale de chacun des deux composés est encore présente.

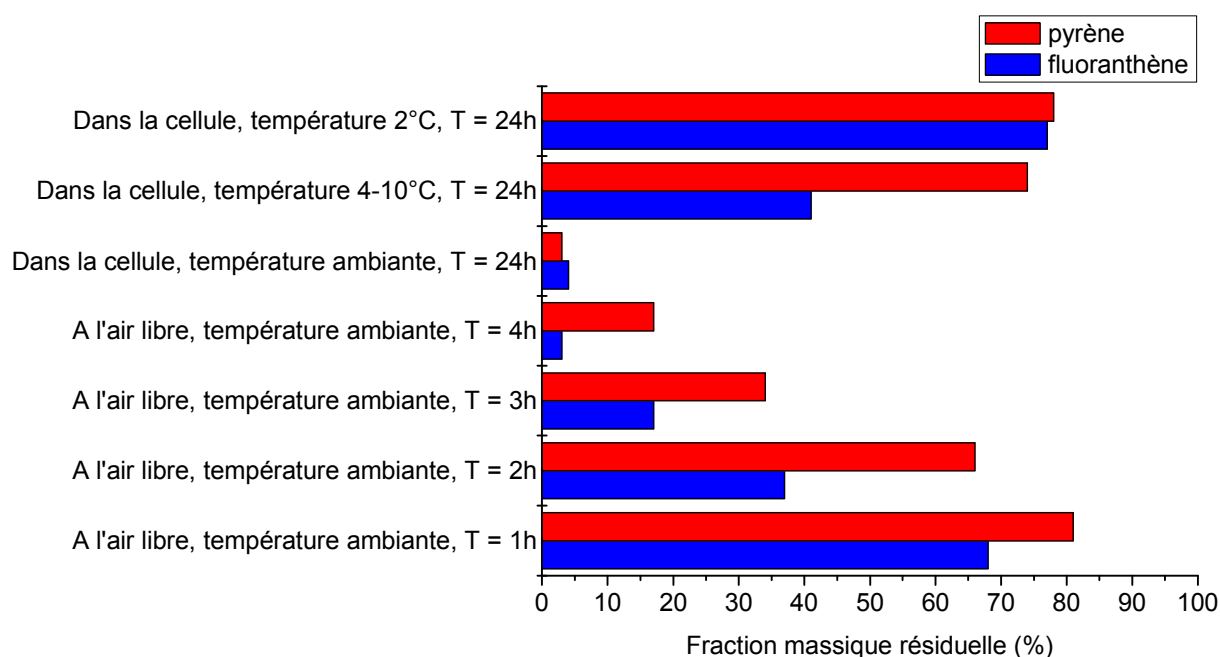


Figure 65 Dégradation du pyrène et du fluoranthène sous différentes configurations de stockage

La dernière configuration de stockage, qui consiste à confiner les échantillons sous une atmosphère inerte d'azote dans une cellule placée à 2 °C, n'a pu être mise en œuvre en raison d'un défaut des joints utilisés qui ont conduit à des fuites de gaz. Une amélioration du dispositif est prévue avec l'utilisation de joints d'un autre type afin d'atteindre une parfaite étanchéité.

En conclusion, malgré l'absence de mise sous atmosphère inerte d'azote des échantillons, le fait de les confiner dans une cellule refroidie nous permet de limiter la dégradation des HAP et de pouvoir réaliser des analyses au moins qualitatives sur la nature des HAP présents après une phase de transport et de stockage pouvant atteindre 24 h environ.

V.3. Discussion des résultats

A la différence des prélèvements atmosphériques réalisés à l'air libre, les contraintes liées à un échantillonnage derrière un turboréacteur d'avion en activité sont très importantes. En effet, le matériel de collecte et la méthode de prélèvement doivent être assez robustes pour supporter la poussée, la température et l'atmosphère acide induites par ce type d'engin et ceci sur une période longue (typiquement plusieurs heures).

Les quantités de matière collectées restent très faibles en comparaison de celles qui peuvent être obtenues par les moyens de « laboratoire ». Cette quantité de matière varie en fonction du moteur étudié (différence de poussée) ainsi que du type de cycle qu'il subit. Le Tableau 35 reporte par exemple les masses de matière collectées, par cycle, sur les filtres en fibre de verre (GFF). Il apparaît que la quantité de matière varie d'au moins un ordre de grandeur entre les deux campagnes de collecte. Le maximum de matière recueillie lors des prélèvements est d'environ 18,75 à 87,50 µg par cycle.

Moteur	CFM56-5C	CFM56-5B
Poussée maximum (lbs)	32500	33000
Poussée en croisière à 35000ft et M=0,8 (lbs)	7585	6420
Cycle	Type I	Type II
Durée relative d'un cycle	1,00	0,68
Quantité moyenne de matière (suie + matrice) par cycle d'exposition (ng)	18 750-87 500	11-28

Tableau 35 *Quantité moyenne de matière (suie + matrice) collectée sur les filtres en fibres de verre derrière chaque moteur par cycle d'exposition*

Nos observations font apparaître que d'autres composés, comme des oxydes métalliques résultant de l'usure normale du moteur, sont émis avec la suie. Il faut également noter la présence d'huile sous forme de gouttelettes de tailles micro et nanométriques. Cette huile est principalement liée aux phases répétées de régime ralenti faisant partie des cycles, ce qui conduit à des quantités émises plus importantes que lors du fonctionnement normal d'un moteur. En effet, la quantité moyenne d'huile émise lors de nos cycles de travail est de l'ordre

de 0,6 à 1 litre par heure de fonctionnement alors que la quantité maximale autorisée est de 0,35 l par heure de fonctionnement en condition normale.

Nous n'avons pas mis en évidence la présence d'autres types de particules (pollens, poussières, silicate) au cours de l'analyse de nos échantillons. Cette constatation est importante puisqu'elle indique que nos procédures de collecte et de conditionnement ont été efficaces et que nos études n'ont donc pas été perturbées par des paramètres extérieurs comme des variations de la composition particulaire de l'air (liées au transport de particules minérales et de matière organique par le vent) entrant dans les turboréacteurs.

Les caractéristiques physiques et chimiques des particules primaires de suie n'ont pratiquement pas été déterminées lors des campagnes de mesure SULFUR 1 à 7 [Schumann 1996], EXCAVATE [Anderson 2005], APEX [Wey 2006], AIRPUR [Puente Lelièvre 2006] et PAZI [DLR Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt - German Space Center 2007]. Or elles permettent d'avoir des informations sur le processus qui conduit à la formation des agrégats, mais aussi aux particules primaires de suie elles même. Nos échantillons contiennent des particules primaires sphériques comme celles généralement observées pour les moteurs diesel [Wentzel 2003], [Lapuerta 2007]. Elles sont toutes « structurées », à la différence de celles observées par Ferry et *al.* [Ferry 2002] dont une partie était amorphe.

Les valeurs des distances réticulaires déterminées pour les particules primaires de suie émises par les deux turboréacteurs sont supérieures à celles du graphite ($d_{(002)}=3,355 \text{ \AA}$ avec une maille hexagonale $\|\vec{a}\|=\|\vec{b}\|=2,464 \text{ \AA}$, $\|\vec{c}\|=6,711 \text{ \AA}$). Toutefois, cette relaxation des distances réticulaires est du même ordre de grandeur que celles mesurées pour des suies issues de chambre de combustion de moteur D30-KU [Ferry 2002]: $d_{(002)}=3,56\pm0,14 \text{ \AA}$, $d_{(10.)}=2,05\pm0,08 \text{ \AA}$, $d_{(11.)}=1,19\pm0,05 \text{ \AA}$). Il apparaît donc que toutes ces suies semblent avoir une même structure générale, qui est toutefois différente de celle du graphite.

Au-delà des distances réticulaires, les rapports entre ces valeurs constituent aussi un paramètre indicatif de la structure globale des particules primaires par rapport au graphite (Tableau 36) :

Rapport des distances entre les plans réticulaires	$d_{(10.)}/d_{(002)}$	$d_{(11.)}/d_{(002)}$
CFM56-5C	0,56	0,33
CFM56-5B	0,54	0,31
[Ferry 2002]	0,58	0,33
Graphite	0,61	0,34

Tableau 36 Rapport entre les valeurs des distances réticulaires

Dans la littérature, la capacité des suies à agir comme noyaux de condensation de la glace repose généralement sur la nature chimique des groupements surfaciques et sur un processus d'activation faisant intervenir l'acide sulfurique [Andronache 1997], [Kärcher 1998]. Or, en première approximation et en ne considérant que l'aspect stérique, la distance entre les plans (002) des particules primaires de suie émises par les turboréacteurs CFM56 est suffisante

($d_{(002)} \approx 3,8-4,2 \text{ \AA}$) pour que des molécules d'eau puissent y être confinées, leur diamètre effectif de Van der Waals étant de $2,82 \text{ \AA}$. Ce n'est pas le cas pour une molécule d'acide sulfurique non hydratée puisque son diamètre effectif est de $5,6 \text{ \AA}$.

Par ailleurs, au-delà de la composition chimique de surface, il faut également tenir compte de la structure des particules et notamment de leur porosité dans leur capacité à agir comme noyau de condensation de la glace. En effet, l'existence d'une porosité conduit à des effets de confinement des molécules d'eau qui peuvent considérablement modifier les propriétés thermodynamiques. Les faibles quantités de matière prélevées ne nous ont pas permis de réaliser des analyses porosimétriques sur les particules primaires de suie. Cependant, les clichés MET et les mesures de distances réticulaires permettent de considérer qu'il existe au moins des pores de taille nanométrique entre les particules primaires de suie qui composent les agrégats, et des pores de taille sub-nanométrique au sein des particules primaires. Ainsi, les énergies d'adsorption d'eau et/ou de nucléation de glace peuvent être modifiées, les effets de confinement liés à l'existence de ces pores abaissant les barrières thermodynamiques et favorisant la condensation d'eau par rapport au même substrat plan dans les mêmes conditions de pression et température. En conclusion, la porosité des particules primaires peut être le phénomène prépondérant qui explique l'aptitude des suies de moteurs d'avion à nucléer la glace.

Les diamètres moyens des particules primaires émises par les deux moteurs sont de $8,0 \pm 0,2 \text{ nm}$ (CFM56-5B) et $9,9 \pm 0,1 \text{ nm}$ (CFM56-5C). Il n'est pas surprenant que ces valeurs soient proches puisque les deux moteurs appartiennent à la même famille et utilisent des technologies de chambre de combustion analogues (richesse de combustion, taux de dilution élevé ($> 5, \dots$)). Ceci est illustré dans le Tableau 37 où l'on peut constater que les chambres de combustion de chacun des moteurs étudiés atteignent les mêmes températures et pressions lorsqu'elles sont sollicitées dans les phases de travail à plein régime.

Moteur	Température (°C)	Pression (bars)
CFM56-5C	1450	32
CFM56-5B	1450	32

Tableau 37 Température et pression moyennes rencontrées au niveau des chambres de combustion des turboréacteurs CFM56-5C et CFM56-5B lorsqu'ils fonctionnent à plein régime (données SNECMA)

Ce diamètre moyen de 8 à 10 nm est légèrement inférieur à celui généralement rencontré pour des particules primaires des suies émises par d'autres sources de particules carbonées (Tableau 1 – § I.2.3). De plus, les processus de combustion (automobile, biomasse, ...) conduisent généralement à une distribution en taille des particules primaires de type gaussien alors que nous n'avons déterminé que des distributions en taille de type log-normal pour les particules primaires émises par les moteurs d'avion. Il est probable que cette différence soit liée aux conditions de combustion particulières dans les turboréacteurs. A l'intérieur d'une chambre de combustion de turboréacteur classique, il règne une pression voisine de 30 bars et une température proche de $1400 - 1500 \text{ °C}$ (à plein régime) alors que la pression atteint 60 à 100 bars et la température varie entre 600 °C et 1500 °C dans celle d'une voiture de type diesel.

Les particules primaires ne sont quasiment jamais isolées mais s'agglomèrent pour former des agrégats. Pour les deux moteurs étudiés, les distributions liant le nombre d'agrégats au nombre de particules primaires qui les composent sont de type log-normales. La moyenne géométrique est de 66 ± 3 particules primaires par agrégat pour le CFM56-5C alors que cette valeur est réduite de moitié, soit 33 ± 3 particules primaires par agrégat, pour le CFM56-5B. Il est intéressant de noter que la majorité des agrégats sont formés d'un nombre limité de particules primaires puisque 75 % d'entre eux contiennent moins de 500 particules primaires pour le CFM56-5C et 75 % en contiennent moins de 300 pour le CFM56-5B. Cet écart pourrait être lié aux différences de performances spécifiques des deux moteurs. Connaissant les caractéristiques des moteurs étudiés (§ II.1), nous observons que la variation du maximum de la distribution du nombre d'agrégat en fonction du nombre de particules varie dans le même sens que la puissance et/ou le taux de dilution des moteurs de la famille CFM56. Cependant, d'autres études doivent être réalisées sur différents moteurs de cette famille, comme le CFM56-7B pour confirmer ou infirmer cette observation.

L'étude des agrégats de suie nous a permis de constater que les moteurs étudiés émettent des agrégats présentant des structures très proches. Les agrégats émis par le CFM56-5C ont une dimension fractale $D_{f,2D} = 1,83 \pm 0,05$, tandis que ceux émis par le moteur CFM56-5B ont une dimension fractale $D_{f,2D} = 1,73 \pm 0,02$. Ces valeurs indiquent que, dans les deux cas, le processus de formation des agrégats est de type « amas-amas ». De plus, il a été observé pour les agrégats des deux moteurs une distribution homogène des dimensions fractales ($R^2 = 0,9755$ pour le CFM56-5C et $R^2 = 0,9716$ pour le CFM56-5B) qui signifie que la méthode de collecte ne semble pas induire un second processus d'agrégation. Toutefois, nous ne pouvons pas formellement exclure qu'un second processus de formation d'agrégat existe, résultant de l'impaction successive de plusieurs agrégats en un même point du support de collecte.

La dimension fractale des agrégats de suie des turboréacteurs étudiés indique une relativement faible compacité des structures rencontrées, comparable à celle mesurée lors des travaux sur les émissions de moteurs diesel (Tableau 1 – § I.2.3). Par conséquent, il n'y a pas de spécificité des émissions aéronautiques qui permettrait de quantifier leur contribution à la pollution globale. Notre étude indique que cette spécificité pourrait cependant être évoquée en ce qui concerne la distribution en taille de type log-normal des particules primaires d'origine aéronautique.

Pour les deux moteurs CFM56-5C et -5B, les distributions en taille de diamètre de giration (d_g) suivent une loi log-normale mais il apparaît une différence qui va dans le même sens que la puissance des moteurs. En effet, le turboréacteur CFM56-5C émet des agrégats ayant un diamètre de giration pratiquement deux fois plus grand que ceux émis par le CFM56-5B. La similitude des tendances d'évolution du diamètre moyen de giration des agrégats et du nombre moyen de particules primaires les composants est prévisible puisqu'ils sont liés par la relation 12 (§ IV.1.1.4.3). Par conséquent, les raisons qui pourraient expliquer la variation du diamètre moyen de giration sont les mêmes que celles envisagées dans le cas du nombre moyen de particules primaires contenues dans un agrégat de suie.

Dans la littérature, les études dédiées aux aérosols sont menées à l'aide de compteurs de particules. Ces appareils déterminent des distributions en taille en fonction du diamètre de mobilité électrique des particules (SMPS et DMA) ou de leur diamètre aérodynamique (ELPI). Lors de ce travail, il n'a pas été possible d'utiliser ce type de dispositifs dans la veine du banc à cause des fortes contraintes physiques et chimiques engendrées par le fonctionnement des turboréacteurs. Cependant, en première approximation, ces différents

diamètres sont comparés au diamètre de giration dans le Tableau 38, tout en gardant à l'esprit qu'ils correspondent tous à des diamètres équivalents mais de natures différentes. En effet, le diamètre de mobilité électrique \bar{D}_m d'une particule correspond au diamètre d'une sphère équivalente ayant la même mobilité électrique que la particule considérée [Ouf 2006] tandis que le diamètre de giration d'un agrégat définit le diamètre d'une sphère infiniment mince (coque) de même inertie et même masse que l'agrégat considéré [Atkins 1998].

Par ailleurs, les diamètres déterminés à l'aide des compteurs de particules résultent de modélisations qui reposent sur des hypothèses et des approximations (densité des objets mesurés...) appliquées à des objets, agrégats, pseudo-sphériques [Marjamäki 2005] tandis que la détermination du diamètre de giration $\bar{d}_{g,3D}$ tient compte de la fractalité des agrégats (§ IV.1.1.4.3). Enfin, il est important de signaler que notre méthode de mesure ne prend en compte que les agrégats de suie alors que les compteurs de particules ne sont pas spécifiques. Ils prennent donc en compte les agrégats de suie mais aussi d'autres éléments de la matrice (oxyde de silice, pollens,...) puisqu'ils ne distinguent ni la structure ni la composition chimique des particules qu'ils détectent.

Le Tableau 38 regroupe les valeurs des diamètres moyens géométriques rencontrés dans la littérature pour des mesures effectuées *i)* en zone aéroportuaire [Puente Lelièvre 2006], *ii)* derrière des moteurs d'avion (APEX [Wey 2006], EXCAVATE [Anderson 2005], ce travail) et *iii)* au niveau d'une chambre de combustion (PARTEMIS [Petzold 2005]).

Programme de campagne de mesure	Référence	Type de diamètre	Moyenne géométrique (nm)	Source d'émission (avion)
APEX	[Wey 2006]	Diamètre de mobilité électrique \bar{D}_m	12 à 35 (à 30 m)	CFM56-2C (DC-8)
EXCAVATE	[Anderson 2005]	Diamètre de mobilité électrique \bar{D}_m	10 à 20 (à 35 m)	RB-211-E4 (B757)
AIRPUR	[Puente Lelièvre 2006]	Diamètre de mobilité électrique \bar{D}_m	10 et 20-40 (à 25 m)	Zone Aéroportuaire (plusieurs avions)
PARTEMIS	[Petzold 2005]	Diamètre de mobilité électrique \bar{D}_m	7-20 et 40	Chambre de combustion (TU)
Ce travail		Diamètre de giration $\bar{d}_{g,3D}$ des agrégats de suie	89 ± 4 (à 27 m)	CFM56-5C (A340)

Ce travail	Diamètre de giration $\bar{d}_{g,3D}$ des agrégats de suie	54 ± 2 (à 27 m)	CFM56-5B (A319)
------------	--	---------------------	-----------------

Tableau 38 Moyennes géométriques de distributions en taille issues des différentes études de moteurs d'avion

Dans chacun des cas, les distributions en taille des agrégats suivent une loi log-normale et les diamètres moyens ont des valeurs proches qui sont de l'ordre de quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres. Différentes théories proposent des relations entre les différents diamètres [Schmidt-Ott 1990], [van Gulijk 2004] et permettent donc d'effectuer des comparaisons. Elles font cependant intervenir la densité des suies qui n'est à ce jour pas clairement établie. Dans notre cas, il ne nous a pas été possible de la déterminer par manque de matière d'une part, et parce-que nos échantillons ne sont pas uniquement constitués de suie pure d'autre part. Il est également très difficile d'approximer la densité des agrégats de suie puisqu'elle évolue en fonction de leur diamètre, qu'il soit aérodynamique, de mobilité électrique, ou de giration [Lapuerta 2006], [Smekens 2007].

Lorsque nous comparons les écart-types géométriques des distributions en taille du diamètre de giration des suies pour les deux CFM56 étudiés à ceux mentionnés pour les distributions en taille d'agrégats derrière d'autres moteurs, nous remarquons très peu de différence (Tableau 39). Les valeurs déterminées pour les deux moteurs CFM56 varient entre 1,82 et 1,84 tandis que celles indiquées dans la littérature sont légèrement plus faibles et situées entre 1,50 et 1,55. Les distributions issues de notre travail sont donc légèrement plus « larges » que celles mentionnées dans la littérature (voir Tableau 39,). Cet écart peu être associé au fait que le nombre total d'agrégats mesurés par les compteurs de particules est très grand ($\gg 15000$) par rapport à nos mesures (~ 380), ce qui conduit à une meilleure statistique.

Auteurs	Source d'émission	Ecart-type géométrique σ_g
[Petzold 1999]	Avion ATTAS (moteur: M45H Mk501)	1,5 à 1,55
[Pueschel 1995]	Concorde	1,52
[Pueschel 1998]	B757	1,50
Ce travail	Moteur CFM56-5C	1,82
Ce travail	Moteur CFM56-5B	1,84

Tableau 39 Comparaison des écarts type géométriques σ_g des distributions en taille des agrégats de suie établies pour plusieurs moteurs

Les agrégats de suie des deux moteurs ont une composition chimique élémentaire très proche, essentiellement constituée de carbone et d'oxygène. Peu d'études ont intégré ce type d'analyse sur des suies émises par des sources aéronautiques (moteur et chambre de

combustion) et leurs résultats sont confrontés à ceux que nous avons obtenus dans le Tableau 40).

Les suies, essentiellement composées de carbone, montrent une présence notable d'oxygène et quelques traces de soufre. Nous constatons que le rapport Oxygène/Carbone est relativement faible quelle que soit la source d'émission. Les proportions d'élément soufre présentes au niveau des agrégats de suie sont différentes entre les chambres de combustion et les moteurs d'avion. Ces variations ne peuvent-être justifiées par la teneur en soufre des carburants alimentant les deux types de sources. En effet, les teneurs sont pratiquement identiques : environ 1100-1200 ppm pour le Jet-A1 entrant dans les moteurs d'avion CFM56 étudiés et 1100 ppm pour le TC1 alimentant les chambres de combustion dans les études de Popovitcheva *et al.* [Popovitcheva 2003] et [Popovitcheva 2004].

Référence	Source d'émission	Source	Rapport de composition élémentaire		
			O/C	S/C	S/O
[Popovitcheva 2003]	Chambre de combustion	D30KU	0,07	-	-
[Popovitcheva 2004]	Chambre de combustion	D36KU	0,02	traces	0,25
Ce travail	Turboréacteur	CFM56-5C	0,02	traces	0,08
Ce travail	Turboréacteur	CFM56-5B	0,03	traces	0,2

Tableau 40 Composition chimique élémentaire de suie

Les paramètres de fonctionnement, c'est-à-dire la richesse du mélange, la température et la pression régnant dans la chambre de combustion, sont les différences majeures entre ces deux sources de suie. Le Tableau 41 résume les données sur les émissions de moteur établies par l'OACI, qui sont détaillées dans l'annexe IV. Les mesures reportées dans ces fiches officielles indiquent que les moteurs D30KU émettent beaucoup plus de composés résultant d'une combustion incomplète (HC – HydroCarbures imbrûlés et CO) que les CFM56-5B et -5C. Ainsi, ces différences de combustion peuvent influencer la quantité de soufre présente dans les échantillons de suie de part la capacité importante du soufre à la formation d'aérosols (gouttelettes d'acide sulfurique) et de gaz sulfurés SO_x/SO_y .

Moteur	Date du test	Emission totale lors du cycle ICAO (g)	
		HC	CO

D30KU	1989	4389	27627
CFM56-5C	1991	943	6142
CFM56-5B	1995	708	3777

Tableau 41 Emissions comparées des moteurs D30KU et CFM56-5C et 5B lors du cycle de référence de l'OACI (§ II.1.2)

Nos observations nous ont permis d'établir que la très grande majorité du soufre n'est pas détectée dans les particules de suie mais plutôt au niveau des gouttelettes d'huile et des oxydes métalliques. Cette observation est confirmée par les mesures de spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier qui ne font apparaître que de faibles signaux des fonctions sulfures, disulfures et sulfates. Nos résultats diffèrent donc de ceux mentionnés par Ferry et *al.* [Ferry 2002] où il n'y a pas de présence d'huile puisqu'une chambre de combustion, qui n'est qu'une partie d'un turboréacteur (§ II.1), n'utilise pas d'huile de lubrification et ne fonctionne pas aux mêmes pressions et températures qu'un moteur d'avion complet. Notons également que l'usure d'autres parties métalliques du moteur, comme les aubes, représente des sources de particules métalliques de différentes natures.

Les analyses FTIR ont mis en évidence la présence de fonctions chimiques identiques à la surface des suies émises par les deux moteurs CFM56. Des fonctions liées aux plans graphitiques (fonctions aromatiques) et des fonctions alcanes ont également été observées. Elles peuvent correspondre aux bords de ces plans graphitiques et/ou aux ponts entre eux. Des fonctions hydrophiles de type cétone, alcool et acide carboxylique ont aussi été détectées. Ces fonctions chimiques illustrent la « complexité » de la structure chimique de la suie émise par un moteur d'avion d'une part, et jouent certainement un rôle sur le caractère hydrophile/hydrophobe [Andronache 1997], [Kärcher 1998] des particules d'autre part. Nous n'avons pas pu effectuer de mesures d'isotherme d'adsorption d'eau pour mettre en évidence le caractère hydrophile ou hydrophobe de ces suies du fait des trop faibles quantités d'échantillons.

Les différentes caractérisations physiques et chimiques que nous avons menées nous amènent à nous interroger sur l'impact des particules de suie émises par les avions sur la santé. Nous comparons dans le Tableau 42 quelques caractéristiques des particules de suie émises par les turboréacteurs CFM56 et les automobiles diesels. Nous remarquons qu'elles présentent le même type de structure turbostratique, de morphologie sphérique, et qu'elles sont de taille nanométrique. De même, des molécules de HAP, cancérigènes, sont adsorbées à leur surface.

propriété	Moteur d'avion	Moteur diesel	Référence pour les données « diesel »
Structure	Turbostratique	Turbostratique	[Wentzel 2003]
Morphologie	Sphérique	Sphérique	
Diamètres des particules primaires \bar{d}_p (nm)	8 à 9,9	20 à 30	Tableau 1

Diamètres des agrégats (nm)	$\bar{d}_{g,3D} = 54 - 89$	$\bar{D}_m \leq 100$	[Lepperhoff 2001]
Molécules adsorbées	HAP	HAP	[Barbusse 2005]

Tableau 42 Comparaison de suies issues d'un moteur d'avion et d'un moteur diesel automobile

Ainsi, à l'image des suies émises par les moteurs diesel, les suies de moteur d'avion peuvent s'avérer nocives, notamment en zone aéroportuaire où leur concentration dans l'air peut être importante. Herndon *et al.* ont notamment mesuré des indices d'émission de moteur d'avion allant de $2 \cdot 10^{14}$ à $2,1 \cdot 10^{16}$ particules par kg de carburant consommé lors de la phase de roulage (aéroport de Boston et New-York, [Herndon 2005]). La taille submicrométrique de ces particules leur permet d'accéder aisément jusqu'au poumon profond (Figure 66) avec à leur surface des molécules cancérogènes [Barbusse 2005], [Tron 2002]

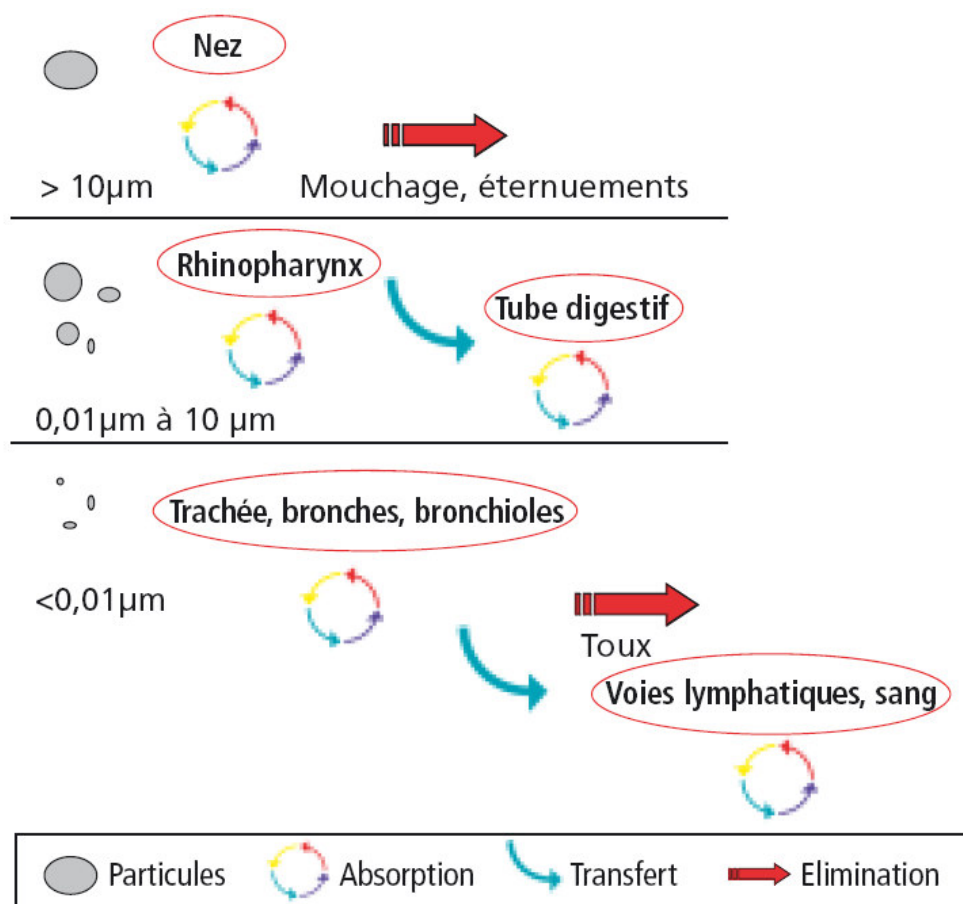


Figure 66 Absorption par le corps humain des particules selon leur taille [Tron 2002]

CONCLUSION

Les objectifs de ce travail consistaient à collecter et déterminer les caractéristiques physico-chimiques d'échantillons de suie émis par un moteur d'avion commercial fonctionnant en conditions réelles. Les résultats obtenus contribuent à une meilleure connaissance des propriétés de ces suies « aéronautiques » et peuvent être utilisés pour paramétriser des modèles ayant trait à :

- l'impact de ces particules sur l'évolution du bilan radiatif de l'atmosphère
- la nucléation des traînées de condensation à l'arrière des avions
- la détermination des mécanismes d'interaction aérosols-gaz atmosphériques pour comprendre l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère

La première partie de cette étude a consisté à concevoir et mettre en œuvre un dispositif de collecte de suie capable de résister aux fortes contraintes mécaniques, thermiques et chimiques qui existent derrière un moteur d'avion commercial simulant des phases de décollage, de roulage, d'atterrissage et de vol de croisière. Plusieurs essais ont été nécessaires pour atteindre cet objectif, sachant qu'il n'existait pas de dispositif standard utilisable. Parallèlement à notre travail de prélèvement et de caractérisation des particules de suie, une méthodologie de gestion des échantillons impliquant un protocole de conditionnement du matériel a été développée, complétée par la conception et la réalisation d'une cellule spécifique de transport/stockage. Cependant, ce nouvel ensemble n'a pu être utilisé en conditions réelles.

Une fois le dispositif de prélèvement opérationnel, la seconde phase de cette étude a concerné la caractérisation physique et chimique des échantillons de suie. La morphologie, la structure, et les distributions en taille des particules primaires et des agrégats de suie ont été déterminées à partir de l'analyse de clichés de microscopie électronique. De même, la dimension fractale D_f et le diamètre de giration d_g ont été établis. Cet ensemble de caractéristiques physiques a été complété par la détermination de la composition chimique élémentaire des particules de suies et de l'identification, au moins partielle, des groupements fonctionnels présents. Notons qu'un tel ensemble de données physico-chimiques des particules de suie émises par un turboréacteur n'existait pas jusqu'alors dans la littérature.

Les résultats obtenus sur les suies émises par les turboréacteurs CFM56-5C et CFM56-5B étudiés, montrent :

- des similitudes sur :
 - les valeurs de la dimension fractale des agrégats
 - les distributions en taille des agrégats et des particules élémentaires
 - la composition chimique élémentaire
 - la nature des groupes fonctionnels présents
- des différences sur :
 - le nombre moyen de particules primaires composant un agrégat de suie
 - le diamètre de giration moyen des agrégats

Cette étude a également permis de réaliser une comparaison entre les tailles de particules primaires mesurées par microscopie électronique à balayage et microscopie électronique en transmission. Il apparaît d'importantes différences, principalement liées à la préparation des

échantillons en MEB, et nos résultats indiquent qu'il est préférable de réaliser ce type d'analyse par MET pour s'affranchir de ce biais.

La comparaison des propriétés physico-chimiques des suies issues des turboréacteurs CFM56 avec celle issues d'autres sources de combustion (automobiles, biomasse...) a permis de mettre en évidence une différence sur la taille du diamètre géométrique moyen des particules primaires. En effet, les sphérules émises par les deux CFM56 présentent des dimensions plus petites que celles couramment mentionnées dans la littérature pour les autres sources d'émission. De plus, nous avons déterminé de façon systématique une distribution log-normale de la taille des particules primaires de suie alors qu'elle est gaussienne pour les autres sources de particules. Ce type de comportement est peu fréquent pour un processus de combustion et mériterait de faire l'objet d'une étude plus approfondie afin d'en connaître l'origine.

Au contraire de nos résultats sur les distributions en taille des particules primaires de suie, les résultats sur les distributions en taille des agrégats sont en bon accord avec les données de la littérature concernant les émissions de moteur d'avion. A l'image de ce qui est mesuré par les compteurs de particules, les distributions que nous avons établies pour le diamètre de giration des agrégats de suie suivent une loi log-normale avec une valeur géométrique moyenne de plusieurs dizaines de nanomètres.

Notre étude montre également que des différences significatives existent entre les échantillons de suie issus d'une chambre de combustion et ceux collectés derrière un moteur d'avion. Elles concernent notamment la structure des particules primaires de suies. Dans le premier cas, un mélange de particules composées de carbone structuré et de particules composées de carbone amorphe est observé, alors que dans le second seules des particules composées de carbone structuré sont observées. Les autres différences notables concernent la composition chimique élémentaire, ou bien encore la matrice (huile,...) environnant les suies. Notons aussi que, bien que les moteurs utilisés ici appartiennent à la même famille et que le fonctionnement de leur chambre de combustion est similaire, nous avons observé des propriétés physiques des agrégats légèrement différentes sur nos échantillons. Tous ces éléments mettent en évidence que des études menées sur une chambre de combustion seule ne peuvent suffirent à représenter les caractéristiques des émissions particulières d'un turboréacteur.

Les perspectives de cette étude sont nombreuses et peuvent être réparties selon deux axes. Le premier concerne la phase de prélèvement qui peut être améliorée. En effet, d'autres types de capteurs et d'instruments peuvent être associés au dispositif actuel pour réaliser par exemple des mesures de vélocimétrie et de composition chimique de la phase gazeuse (CO_2 , NO_x ...). Ceci permettrait de caractériser l'ensemble des émissions de particules et de gaz par les moteurs placés sur le banc d'essai SNECMA. Une corrélation serait alors envisageable entre la composition chimique de la phase gazeuse et la présence de certaines fonctionnalités chimiques présentes sur les particules lorsqu'elles vieillissent dans la plume du réacteur puis dans l'atmosphère. Par ailleurs, la mise en œuvre d'une ligne de prélèvement autoriserait l'utilisation de compteurs de particules du type SMPS, ELPI ou FMPS et des précipitateurs électrostatiques pour établir en temps réel les distributions en taille et en nombre des particules selon des diamètres particuliers à chacune de ces techniques. Ces distributions pourraient alors être confrontées à celles déterminées ex-situ par les méthodes de microscopie électronique que nous avons utilisées pour établir des relations fiables entre les différents diamètres géométrique, de giration, et de mobilité électrique. Il serait également intéressant de réaliser une étude spécifique des émissions de chacune des phases de vol (parking, roulage, décollage, vol de croisière, et atterrissage) afin de connaître les différences éventuelles de

propriétés physico-chimiques des particules liées à chacun des régimes de fonctionnement des moteurs. Enfin, il serait important de réaliser l'ensemble des mesures sur d'autres types et d'autres familles de moteurs pour connaître les similitudes et/ou les différences de propriétés physico-chimiques des suies émises. Cela permettrait de proposer aux modélisateurs un ensemble de paramètres caractéristiques des particules émises pour chaque type (ou famille) de moteur, ou encore de proposer un jeu de paramètres unique pour l'ensemble d'une famille de moteurs si les propriétés physico-chimiques s'avèrent homogènes.

Le second axe concerne les techniques de caractérisation utilisées et l'utilisation des données expérimentales. En effet, d'autres techniques complémentaires comme la microscopie à force atomique (AFM), ou la tomographie, pourraient être mises en œuvre pour contribuer à une meilleure description de la structure 3D de la suie. De même, il serait intéressant de déterminer la porosité des suies car elle a des conséquences très importantes vis-à-vis des propriétés thermodynamiques et de la réactivité de ces suies avec les gaz atmosphériques, et notamment l'eau. Ces données pourraient être intégrées dans des modèles moléculaires afin d'améliorer leur représentativité d'une part, et d'autre part d'identifier et comprendre les mécanismes moléculaires mis en jeu dans les interactions particules-gaz, ou encore les processus de nucléation de la glace qui conduisent à la formation de traînées de condensation et de cirrus artificiels. Enfin, il me semble très important à l'heure actuelle d'effectuer des études toxicologiques concernant l'impact de ces nanoparticules sur la santé. Ce travail, à l'interface de plusieurs disciplines, nécessite l'identification et la quantification des molécules organiques présentes à la surface des agrégats de suie et la réalisation des tests biologiques sur l'assimilation de ces nanoparticules par des entités vivantes. Ces informations sont essentielles dans le cadre de la gestion de l'impact sanitaire de l'activité d'un aéroport sur ses riverains, sur ses employés et dans une moindre mesure sur les passagers qui ne sont soumis qu'à des temps d'exposition relativement courts.

BIBLIOGRAPHIE

- [Airbus 2006] Airbus (2006); *Global Market Forecast. The future of flying 2006-2025* www.airbus.com
- [Ammann 1998] Ammann, M., M. Kalberer, D. T. Jost, L. Tobler, E. Rössler, D. Piguet, H. W. Gäggeler and U. Baltensperger (1998). “*Heterogeneous production of nitrous acid on soot in polluted air masses.*” *Nature* **395** (1998) 157-160.
- [Anderson 2005] Anderson, B. E., H.-S. Branham, C. H. Hudgrins, J. V. Plant, J. O. Ballenthin, T. M. Miller, A. A. Viggiano, D. R. Blake, H. Boudrie, M. Canagaratna, R. C. Miake-Lye, T. Onasch, J. Wormhoudt, D. Worsnop, K. E. Brunke, S. Culler, P. Penko, T. Sanders, H.-S. Han, P. Lee, D. Y. H. Pui, K. L. Thornhill and E. L. Winstead; *Experiment to Characterize Aircraft Volatile Aerosol and Trace-Species Emissions (EXCAVATE)* NASA (2005) - n°NASA/TM-2005-213783
- [Andronache 1997] Andronache, C. and W. L. Chameides “*Interactions between sulfur and soot emissions from aircraft and their role in contrail formation.*” *Journal of Geophysical Research* **102** (D17) (1997) 21443-21451.
- [Atkins 1998] Atkins, P. W. (1998). *Les concepts de chimie physique*, Dunod Ed, ISBN : 2-10-003944-X .
- [Barbusse 2005] Barbusse, S. and G. Plassat; *Les particules de combustion automobile et leurs dispositifs d'élimination* ADEME (2005) - n°5728 - 132p.
- [Baron 2001] Baron, P. A. and K. Willeke *Aerosol Measurement. Principle, techniques, and applications. 2sd Edition.* USA, Wiley-Interscience Ed., John Wiley & sons, Inc. (2001) ISBN : 13978-0-471-78492-0 / 100-471-78492-3 : 1129p.
- [Barone 2006] Barone, T. L., A. Amit Lall, Y. Zhu, R.-C. Yu and S. K. Friedlander “*Inertial deposition of nanoparticle chain aggregates: Theory and comparison with impactor data for ultrafine atmospheric aerosols.*” *Journal of Nanoparticle Research*, (2006) DOI 10.1007/s11051-006-9128-z.
- [Bernier 1997] Bernier, P. and S. Lefrant *Le carbone dans tous ses états*, Gordon and Breach Science Publishers (1997).
- [Blake 1995] Blake, D. F. and K. Kato. “*Latitudinal distribution of black carbon soot in the upper troposphere and lower stratosphere.*” *Journal of Geophysical Research* **100** (1995) 7195-7202

[Boeing Company 2006]

Boeing Company (2006); *Current market outlook. Airplane delivery forecast 2006*>> www.boeing.com/commercial/cmo

[Brasseur 1999] Brasseur, A. L. *Développement d'une méthodologie pour l'étude de l'évolution chimique des hydrocarbures aromatiques polycycliques associés aux particules issues de combustion. Cas particulier des particules de diesel* (1999) thèse Université Paris VII.

[Brignon 2006] Brignon, J. M. and S. Soleille; *HAP* (2006) INERIS - Données technico-économiques sur les substances chimiques en France - 50p.

[Brink 2004] Brink, H. T., W. Maenhaut, R. Hitenberger, T. Gnauk, G. Spindler, A. Even, X. Chi, H. Bauer, H. Puxbaum, J. P. Putaud, J. Tursic and A. Berner "INTERCOMP2000 : the comparability of methods in use in Europe for measuring the carbon content of aerosol." *Atmosphere Environment* **38**: (2004) 6507-6519.

[Brockmann 2001] Brockmann Sampling and transport of aerosols (chapter 8). *Aerosol Measurement. Principles, Techniques, and Applications*, (2001) 2nd edition. P. A. Baron and K. Willeke. New York: 143-196.

[Chandler 2007] Chandler, M. F., Y. Teng and U. O. Koylu "Diesel engine particulate emissions: A comparison of mobility and microscopy size measurements." *Proceedings of the Combustion Institute* **31** (2007) 2971-2979.

[Chazette 2004] Chazette, P. "Aérosol anthropique : impact climatique et environnemental." *Technique de l'Ingénieur* (RE 21): (2004) 1-11.

[Delmas 2005] Delmas, R., G. Mégie and V. H. Peuch *Physique et chimie de l'atmosphère*, (2005) Editions Belin 2-7011-3700-4 : 639p.

[Demirdjian 2007] Demirdjian, B., D. Ferry, J. Suzanne, O. B. Popovicheva, N. M. Persiantseva and N. K. Shonijia "Heterogeneities in the microstructure and composition of aircraft engine combustor soot: impact on the water uptake." *Journal of Atmospheric Chemistry* **56** (2007) 83-103.

[DLR Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt German Space Center 2007]

DLR Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt - German Space Center (2007) www.pa.op.dlr.de/pazi.

[Eberhart 1991] Eberhart, J. P. *Structural and chemical analysis of materials*. (1991) ISBN : 0-471-92977-8 : 545p.

[Ferry 2002] Ferry, D., J. Suzanne, S. Nitsche, O. B. Popovicheva and N. K. Shonijia "Water adsorption and dynamics on kerosene soot under atmospheric conditions." *Journal of Geophysical Research* **107** (2002) 1-10.

- [Field 1995] Field, J. E., Q. Sun, H. Gao and G. H. Jilbert “*Solid particle erosion of IR-transmitting materials and diamond composites.*”
Wear **186-187** (1995) 195-202.
- [Gardette 1985] Gardette, G. and A. Déom; *Tenue à la pluvioerosion de matériaux infrarouges* (1985) ONERA - rapport technique - n°5/7248 SY
- [Grassian 2002] Grassian, V. H. “*Chemical reactions of nitrogen oxides on the surface of oxide, carbonate, soot, and mineral dust particles: implications for the chemical balance of the troposphere.*”
Journal of Physical Chemistry Part A **106** (2002) 860-877.
- [Groupe français de combustion]
Groupe français de combustion - www.gfcombustion.asso.fr.
- [Gwaze 2006] Gwaze, P., O. Schmid, H. J. Annegarn, M. O. Andrae, J. Huth and G. Helas. “*Comparison of three methods of fractal analysis applied to soot aggregates from wood combustion.*”
Aerosol Science **37** (2006) 820-838.
- [Hawkes 2006] Hawkes, P. and J. C. H. Spence *Science of Microscopy*, Springer Editor. (2006) ISBN : 0387252967 / 978-0387252964 : 1318p.
- [Herndon 2005] Herndon, S. C., T. B. Onasch, B. P. Frank, L. C. Marr, J. T. Jayne, M. R. Canagaratna, J. Grygas, T. Lanni, B. E. Anderson, D. Worsnop and R. Miake-Lye “*Particulate emissions from in-use Commercial Aircraft.*”
Aerosol Science and Technology **39** (2005) 799-809.
- [Highwood 2006] Highwood, E. J. and R. P. Kinnersley “*When smoke gets in our eyes: The multiple impacts of atmospheric black carbon on climate, air quality and health.*”
Environment International **32** (2006) 560-566.
- [Hinds 1999] Hinds, W. C. *Aerosol technology. Properties, behavior, and measurement of airborne particles.* New-york, A Wiley-Interscience publication, Ed., John Wiley & sons, inc. (1999) ISBN : 0-471-19410-7 : 483p.
- [Hitzenberger 2004] Hitzenberger, R., A. Berner, Z. Gamabos, W. Maenhaut, J. Cafmeyer, J. Schwarz, K. Müller, G. Spindler, W. Wieprecht, K. Acker, R. Hillamo and T. Mäkelä “*Intercomparison of methods to measure the mass concentration of the atmospheric aerosol during INTERCOMP2000 - influence of instrumentation and size cuts.*”
Atmospheric Environment **38** (2004) 6467-6476.
- [International Civil Aviation Organization 1993]
International Civil Aviation Organization. Annex 16 - Aircraft engine emissions (volume II) - second edition. Environmental Protection, (1993) International Standards and Recommended Practices.

[IPCC special report 1999]

IPCC special report; *Aviation and the global atmosphere - Intergovernmental panel on climate change?* (1999) UNEP / WMO - 373p.

[Kärcher 1998] Kärcher, B. "*Physicochemistry of aircraft-generated liquid aerosols, soot, and ice particles.*"
Journal of Geophysical Research **103** (D14) (1998) 17111-17128.

[Koylu 1995] Koylu, U. O., G. M. Faeth, T. L. Farias and M. G. Carvalho "*Fractal and Projected Structure Properties of Soot Aggregates.*"
Combustion and Flame **100** (1995) 621-633.

[Koylu 1997] Koylu, U. O., C. S. McEnally, D. E. Rosner and L. D. Pfefferle "*Simultaneous Measurements of Soot Volume Fraction and Particle Size/Microstructure in Flames Using a Thermophoretic Sampling Technique.*"
Combustion and Flame **110** (1997) 494-507.

[Lapuerta 2006] Lapuerta, M., R. Ballesteros and F. J. Martos "*A method to determine the fractal dimension of diesel soot agglomerates.*"
Journal of Colloid and Interface Science **303** (2006) 149-158.

[Lapuerta 2007] Lapuerta, M., F. J. Martos and J. M. Herreros "*Effect of engine operating conditions on the size of primary particles composing diesel soot agglomerates.*"
Aerosol Science **38** (2007) 455-466.

[Lepourry 1991] Lepourry, P. and R. Ciry (1991). *Propulseurs aéronautiques*.
Toulouse, Cépaduès Editions.

[Lepperhoff 2001] Lepperhoff, G. "*Influences on the particle size distribution of diesel particulate emissions.*"
Topics in Catalysis **16/17** (1-4) (2001) 249-254.

[Lide 1998-1999] Lide, D. R. *CRC Handbook of chemistry and physics 79th edition*, 79th, (1998-1999) ISBN : 0849304792 / 978-0849304798 : 2496p.

[Marjamäki 2005] Marjamäki, M., M. Lemmetty and J. Keskinen "*ELPI Response and data reduction I: response functions.*"
Aerosol Science and Technology **39** (2005) 575-582.

[Matti Maricq 2004] Matti Maricq, M. and N. Xu "*The effective density and fractal dimension of soot particles from premixed flames and motor vehicle exhaust.*"
Aerosol Science **35** (2004) 1251-1274.

- [Meakin 1989] Meakin, P., B. Donn and G. Mulholland "Collisions between Point Masses and Fractal Aggregates." *Langmuir* **5** (1989) 510-518.
- [Neer 2006] Neer, A. and U. O. Koçlu "Effect of operating conditions on the size, morphology, and concentration of submicrometer particulates emitted from a diesel engine." *Combustion and Flame* **146** (2006) 142-154.
- [Olfert 2007] Olfert, J. S., J. P. R. Symonds and N. Collings "The effective density and fractal dimension of particles emitted from a light-duty diesel vehicle with a diesel oxydation catalyst." *Aerosol Science* **38** (2007) 69-82.
- [Ouf 2006] Ouf, F.-X. *Caractérisation des aérosols émis lors d'un incendie* (2006) thèse Rouen.
- [Penner 1999] Penner, J. E., D. H. Lister, D. J. Griggs, D. J. Dokken and M. McFarland *Aviation and the global atmosphere*. USA Ed., Press syndicate of the University of Cambridge (1999) ISBN : 0-521-66300-8 / 0-521-66404-7 : 373p.
- [Petzold 1999] Petzold, A., J. Ström, F. P. Schröder and B. Kärcher "Carbonaceous aerosol in jet engine exhaust: emission characteristics and implications for heterogeneous chemical reactions." *Atmospheric Environment* **33** (1999) 2689-2698.
- [Petzold 2005] Petzold, A.; *Particle emissions from aviation: microphysics, chemistry, and climate impact*. DLR - Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V. - (2005) n°ISSN 1434-8454 / ISRN DLR-FB--2006-02 - 88p.
- [Popovitcheva 2000] Popovitcheva, O. B., N. M. Persiantseva, M. E. Trukhin, G. B. Rulev, N. K. Shonija, Y. Y. Buriko, A. M. Starik, B. Demirdjian, D. Ferry and J. Suzanne "Experimental characterization of aircraft combustor soot : microstructure, surface area, porosity and water adsorption." *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2** (2000) 4421-4426.
- [Popovicheva 2003] Popovicheva, O. B., N. M. Persiantseva, B. V. Kuznetsov, T. A. Rakhmanova, N. K. Shonija, J. Suzanne and D. Ferry "Microstructure and water adsorbability of aircraft combustor soots and kerosene flame soots : toward an aircraft-generated soot laboratory surrogate." *Journal Phys. Chem. A* **107** (2003) 10046-10054.
- [Popovicheva 2004] Popovicheva, O. B., N. M. Persiantseva, E. E. Lukhovitskaya, N. K. Shonija, N. A. Zubareva, B. Demirdjian, D. Ferry and J. Suzanne "Aircraft engine soot as contrail nuclei." *Geophysical research letters* **31** (2004) 1-4.

[Puente Lelièvre 2006]

Puente Lelièvre, C., G. Magnani, R. Ramaroson, F. Gouriou, M. Talbaut, E. Fréjafon, G. Schuermann, K. Schaefer, I. Cornier, S. Emeis, F. Vannier, E. Paux, A. Copalle and P. Perros “*Air quality and engine emission at Paris CDG airport during AIRPUR field campaigns.*” Air Pollution **XIV** (261) (2006).

[Pueschel 1995]

Pueschel, R., G. Ferry, D. Allen, K. Boering, S. Verma, S. Howard, J. Goodman and P. Hamil *Soot aerosol in the loer stratosphere : pole-to-pole variability and contributions by aircraft.* 1st AIAA Aircraft Engineering, Technology, and Operations Congress, (1995) Los Angeles

[Pueschel 1998]

Pueschel, R. F., S. Verma, G. V. Ferry, S. D. Howard, S. Vay, S. A. Kinne, J. Goodman and A. Strawa “*Sulfuric acid and soot particle formation in aircraft exhaust.*” Geophysical Research Letters **25** (10) (1998) 1685-1688.

[Richter 2000]

Richter, H. and J. B. Howard “*Formation of polycyclic aromatic hydrocarbons and their growth to soot - a review of chemical reaction pathways.*” Progress in Energy and Combustion Science **26** (2000) 565-608.

[Ruiz 2006]

Ruiz, E., D. Delhayé and X. Vancassel; *PRIMEQUAL 2: Etude de l'évolution en zone aéroportuaire des suies émises par les avions - Développements expérimental et numérique* (2006) ONERA - Rapport Technique - n°RT 1/09800 DMPH

[Ruiz 2007]

Ruiz, E., X. Vancassel, D. Delhayé, W. Ghedaïfi, M. Sicard and F. Ser; *Etude de l'impact des émissions d'avions sur la composition de l'atmosphère*(2007) ONERA - Rapport - n°RF 3/11067 DMPH -

[Sausen 2005]

Sausen, R., I. Isaksen, V. Grewe, D. Hauglustaine, D. S. Lee, G. Myhre, M. O. Köhler, G. Pitari, U. Schumann, F. Stordal and C. Zerefos “*Aviation radiative forcing 2000: An update on IPCC (1999).*” Meteorologische Zeitschrift **14** (2005) 555-561.

[Schmidt-Ott 1990]

Schmidt-Ott, A., U. Baltensperger, H. W. Gäggeler and D. T. Jost “*Scaling behaviour of physical parameters describing agglomerates.*” Journal of Aerosol Science **21** (1990) 711-717.

[Schneider 2006]

Schneider, J., S. Weimer, F. Drewnick, S. Borrmann, G. Helas, P. Gwaze, O. Schmid, M. O. Andreae and U. Kirchner “*Mass spectrometric analysis and aerodynamic properties of various types of combustion-related aerosol particles.*” International Journal of Mass Spectrometry **258** (2006) 37-49.

- [Schumann 1996] Schumann, U., J. Ström, R. Busen, R. Baumann, K. Gierens, M. Krautstrunk, F. P. Schröder and J. Stingl "*In situ observations of particles in jet aircraft exhausts and contrails for different sulphur-containing fuels.*"
Journal of Geophysical Research **101** (D3) (1996) 6853-6869.
- [Schumann 2005] Schumann, U. "*Formation, properties, and climatic effects of contrails.*"
Comptes Rendus Physique **6** (2005) 549-565.
- [Seinfeld 1998] Seinfeld, J. H. "*Clouds, contrails and climate.*"
Nature **391** (1998) 837.
- [Seinfeld 2006] Seinfeld, J. H. and S. N. Pandis *Atmospheric chemistry and physics*. Hoboken., (2006) J. Wiley & Sons Ed.
- [Smekens 2005] Smekens, A., R. H. Moreton Godoi, P. Berghmans and R. Van Grieken "*Characterisation of soot emitted by domestic heating, aircraft and cars using diesel or biodiesel.*"
Journal of Atmospheric Chemistry **52** (2005) 45-62.
- [Smekens 2007] Smekens, A., R. H. M. Godoi, M. Vervoort, P. Van Espen, S. S. Potgieter-Vermaak and R. Van Grieken "*Characterization of individual soot aggregates from different sources using image analysis.*"
Journal of Atmospheric Chemistry **56** (2007) 211-223.
- [Snecma] Snecma - www.snecma.com.
- [Thevenin 2004] Thevenin, J. C. *Le turboréacteur, moteur des avions à réactions, 3ème Edition*. (2004) Association Aéronautique et Astronautique de France, AAAF.
- [Tian 2006] Tian, K., K. A. Thomson, F. Liu, D. R. Snelling, G. J. Smallwood and D. Wang "*Determination of the morphology of soot aggregates using the relative optical density methods for the analysis of TEM images.*"
Combustion and Flame **144** (2006) 782-791.
- [Tron 2002] Tron, I., O. Piquet, A. Baert and C. Mouton; *Toxon. Manuel de toxicologie* (2002) ADEME
- [van Gulijk 2004] van Gulijk, C., J. C. M. Marijnissen, M. Makee, J. A. Mouljin and A. Schmidt-Ott "*Measuring soot with a scanning mobility particle sizer and an electrical low-pressure impactor: performance assessment with a model fractal-like agglomerates.*"
Journal of Aerosol Science **35**: (2004) 633-655.
- [Vander Wal 2004] Vander Wal, R. L. and A. J. Tomasek "*Soot nanostructure: dependence upon synthesis conditions.*"
Combustion and Flame **136** (2004) 129-140.
- [Vollhardt 1999] Vollhardt, K. P. C. and N. E. Schore *Traité de chimie organique*. Paris Ed., (1999) De Boeck & Larcier s.a. 2-8041-3153-X : 1297p.

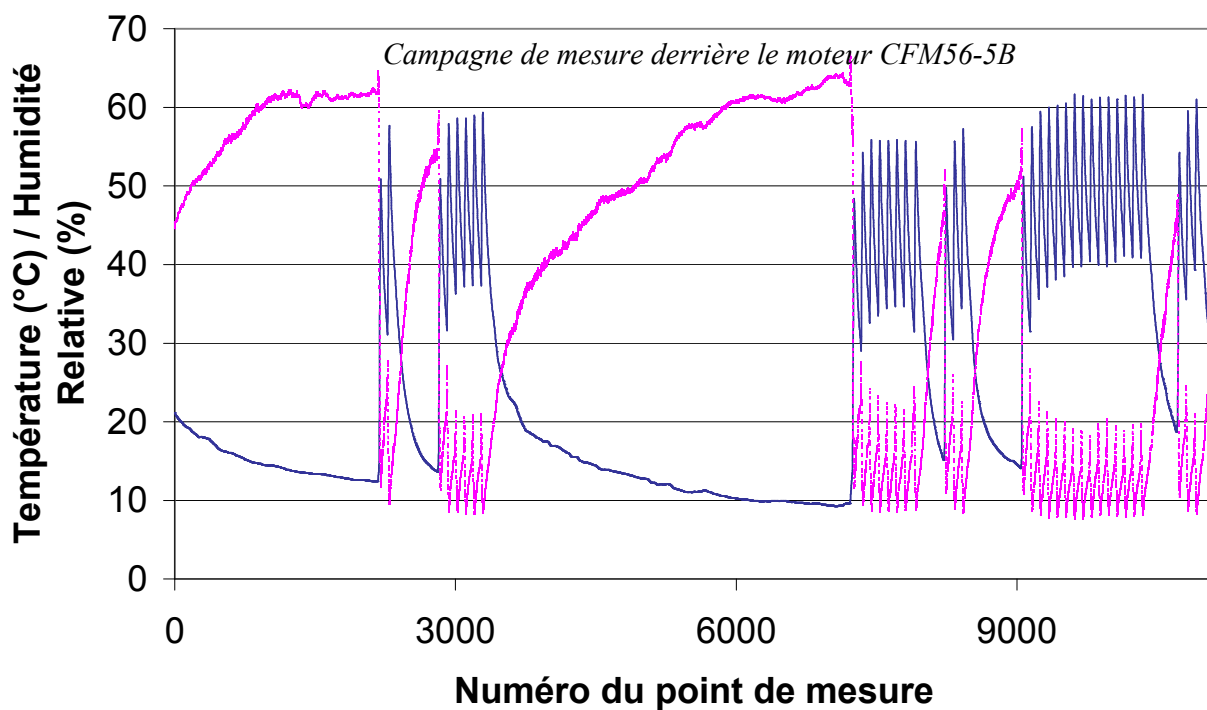
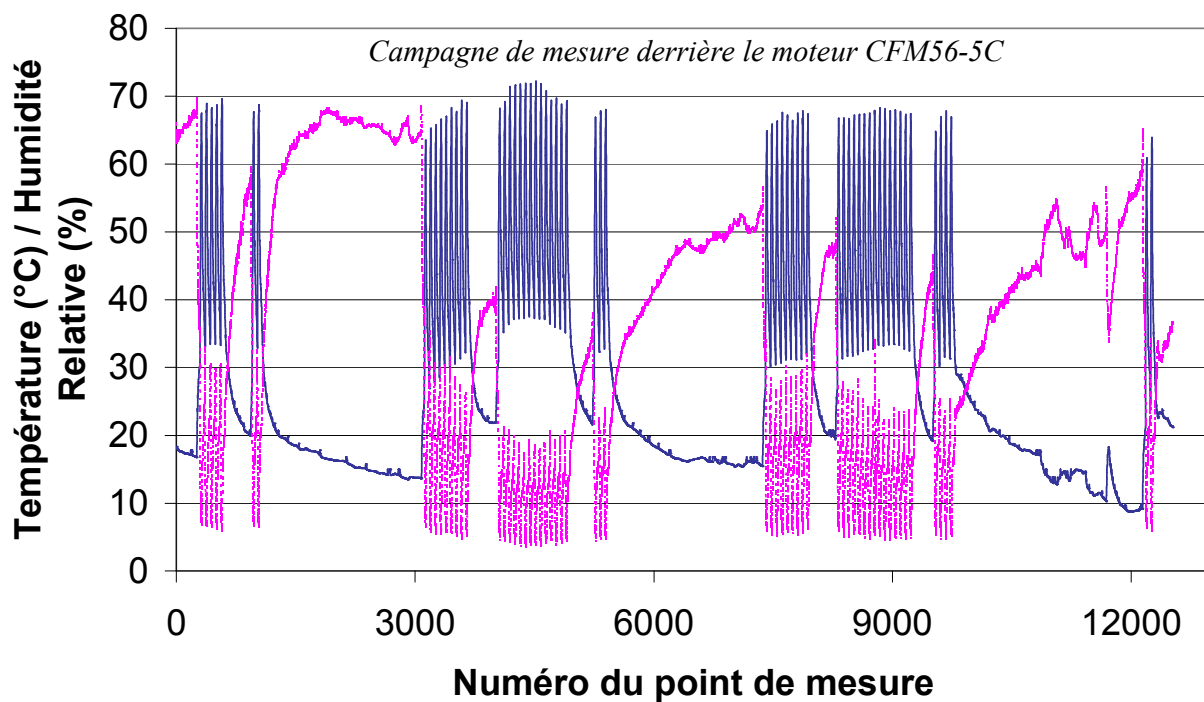
-
- [Wentzel 2003] Wentzel, M., H. Gorzawski, K. H. Naumann, H. Saathoff and S. Weinbruch “*Transmission electron microscopical and aerosol dynamical characterization of soot aerosols.*” *Aerosol Science* **34** (2003) 1347-1370.
- [Wey 2006] Wey, C. C., B. E. Anderson, C. Hudgins, C. Wey, X. Li-Jones, E. Winstead, L. K. Thornhill, P. Lobo, D. Hagen, P. hitefield, P. E. Yelvington, S. C. Herndon, T. B. Onasch, R. C. Miake-Lye, J. Wormhoudt, W. B. Knighton, R. Howard, D. Bryant, E. Corporan, C. Moses, D. Holve and W. Dodds; *Aircraft Particle Emissions eXperiment (APEX)* NASA - (2006) Rapport - n°NASA/TM-2006-214382
- [Wilson 2004] Wilson, C., A. Petzold, S. Nyeki, U. Schumann and R. Zellner “*Measurement and prediction of emissions of aerosols and gaseous precursors from gas turbine engine (PartEmis) : an overview.*” *Aerospace Science and Technology* **8** (2004) 131-143.

ANNEXES

- ANNEXE I** Relevés de température et d'humidité relative des campagnes de collecte d'échantillons derrière les moteurs CFM56-5C et le CFM56-5B.
- ANNEXE II** Etude de répétabilité intra-jours des prélèvements de suie collectés derrière le moteur CFM56-5C via la détermination des distributions en taille de particules primaires.
- ANNEXE III** Mesure des variations de masse des filtres en fibres de verre (*GFF*) et en quartz (*Q*) placés lors des campagnes d'études des moteurs CFM56-5C et du CFM56-5B.
- ANNEXE IV** Fiches de certification des moteurs CFM56-5C, CFM56-5B et D-30-KU.

ANNEXE I

Relevés de température et d'humidité relative des campagnes de collecte d'échantillons derrière les moteurs CFM56-5C et CFM56-5B



— température en °C - - - - humidité relative %RH

ANNEXE II

Etude de répétabilité intra-journalière des prélèvements de suie collectés derrière le moteur CFM56-5C via la détermination des distributions en taille de particules primaires

Distribution	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2 (nm)	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
Jour 1	20,4	19,34	0,46	4922	16	0,9987
Membrane 1	26,5	15,07	0,46	1466	16	0,9837
Membrane 2	18,3	26,14	0,38	1380	16	0,9972
Membrane 4	20,0	20,83	0,44	2076	16	0,9953

Tableau 43 Comparaison des coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors du jour 1 de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage sur plusieurs membranes de porosité 0,22 μm

Distribution	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2 (nm)	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
Jour 2	21,7	18,24	0,45	3750	26	0,9930
Membrane 7	19,7	25,76	0,36	1930	26	0,9953
Membrane 10	27,4	14,52	0,46	1820	26	0,9865

Tableau 44 Comparaison des coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors du jour 2 de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage sur plusieurs membranes de porosité 0,22 μm

Distribution	a_1 (nm)	a_0 (%)	a_2 (nm)	N_{total}	Nombre de cycle	R^2
Jour 3	27,2	14,26	0,47	4822	21	0,9775
Membrane 7	38,4	15,09	0,33	1046	21	0,9410
Membrane 9	31,4	14,87	0,38	2179	21	0,9819
Membrane 11	20,2	21,12	0,42	1597	21	0,9902

Tableau 45 Comparaison des coefficients des distributions en taille des particules primaires de suie mesurées lors du jour 3 de collecte derrière le moteur CFM56-5C lors de cycles décollage/atterrissage sur plusieurs membranes de porosité 0,40 μm

ANNEXE III

Mesure des variations de masse des filtres en fibres de verre (*GFF*) et en quartz (*Q*) lors des campagnes d'études des moteurs CFM56-5C et du CFM56-5B

Référence de l'échantillon	GFF13	GFF1	GFF2	GFF3	GFF14	GFF5	GFF7	GFF8	GFF15
Nombre de cycles d'exposition	blanc	16	16	16	blanc	16	16	16	blanc
Variation de masse (mg)	0,0	1,0	0,3	0,8	-0,1	0,8	1,4	1,2	0,0
Référence de l'échantillon	GFF29	GFF31	GFF32	GFF33	GFF34	GFF30			
Nombre de cycles d'exposition	blanc	21	21	21	21	blanc			
Variation de masse (mg)	0,1	1,1	1,1	1,3	1,5	0,0			
Référence de l'échantillon	GFF27	GFF9	GFF10	GFF11	GFF12	GFF28			
Nombre de cycles d'exposition	blanc	47	47	47	47	blanc			
Variation de masse (mg)	0,1	2,2	2,9	2,4	3,3	0,1			
Référence de l'échantillon	Q13	Q1	Q2	Q3	Q14	Q4	Q6	Q8	Q15
Nombre de cycles d'exposition	blanc	16	16	16	blanc	16	16	16	blanc
Variation de masse (mg)	-0,1	-0,7	0,4	0,0	0,0	-0,7	0,7	-0,4	0,1
Référence de l'échantillon	Q31	Q33	Q34	Q35	Q36	Q32			
Nombre de cycles d'exposition	blanc	21	21	21	21	blanc			
Variation de masse (mg)	-0,1	0,7	-0,1	0,8	0,5	0,1			
Référence de l'échantillon	Q29	Q9	Q20	Q11	Q12	Q30			
Nombre de cycles d'exposition	blanc	47	47	47	47	blanc			
Variation de masse (mg)	0,2	0,4	0,9	2,5	1,9	0,1			

Tableau 46 Variation de masse des filtres en fibres de verre (*GFF*) et en quartz (*Q*) exposés aux émissions du moteur CFM56-5C


Référence de l'échantillon	GFF2	GFF11	GFF21	GFF22	GFF23	GFF24				
Nombre de cycles d'exposition	blanc	blanc	blanc	blanc	blanc	blanc				
Variation de masse (mg)	0,0	0,2	0,0	0,2	0,2	0,2				
Référence de l'échantillon	GFF3	GFF4	GFF5	GFF6	GFF7	GFF10	GFF17	GFF19	GFF20	
Nombre de cycles d'exposition	37	37	37	37	37	37	37	37	37	
Variation de masse (mg)	0,6	0,7	0,4	0,5	1,0	0,4	1,1	0,7	0,6	

Tableau 47 Variation de masse des filtres en fibres de verre (GFF) et en quartz (Q) exposés aux émissions du moteur CFM56-5B

ANNEXE IV

Fiches de certifications des moteurs CFM56-5C, CFM56-5B et D-30-KU

Fiche de certification du moteur CFM56-5C

		ICAO ENGINE EXHAUST EMISSIONS DATA BANK					
SUBSONIC ENGINES							
ENGINE IDENTIFICATION:		CFM56-5C3/P	BYPASS RATIO:		6.7		
UNIQUE ID NUMBER:		7CM046	PRESSURE RATIO (π_{00}):		29.2		
ENGINE TYPE:		MTF	RATED OUTPUT (F_{00}) (kN):		143.33		
<u>REGULATORY DATA</u>							
CHARACTERISTIC VALUE:			HC	CO	NOx		
D _p /F ₀₀ (g/kN) or SN			10.2	52.6	55.4		
AS % OF ORIGINAL LIMIT			52.0 %	44.6 %	56.3 %		
AS % OF CAEP/2 LIMIT (NOx)					70.4 %		
AS % OF CAEP/4 LIMIT (NOx)					84.3 %		
<u>DATA STATUS</u>			<u>TEST ENGINE STATUS</u>				
- PRE-REGULATION			x NEWLY MANUFACTURED ENGINES				
x CERTIFICATION			- DEDICATED ENGINES TO PRODUCTION STANDARD				
- REVISED (SEE REMARKS)			- OTHER (SEE REMARKS)				
<u>EMISSIONS STATUS</u>			<u>CURRENT ENGINE STATUS</u>				
x DATA CORRECTED TO REFERENCE (ANNEX 16 VOLUME II)			(IN PRODUCTION, IN SERVICE UNLESS OTHERWISE NOTED)				
			- OUT OF PRODUCTION				
			- OUT OF SERVICE				
<u>MEASURED DATA</u>							
MODE	POWER SETTING (%F ₀₀)	TIME minutes	FUEL FLOW kg/s	EMISSIONS INDICES (g/kg)			SMOKE NUMBER
				HC	CO	NOx	
TAKE-OFF	100	0.7	1.316	0	0.8	31.6	11.6
CLIMB OUT	85	2.2	1.085	0	0.7	25.1	-
APPROACH	30	4.0	0.355	0	1.9	9.6	-
IDLE	7	26.0	0.112	5.4	33.4	4	-
LTO TOTAL FUEL (kg) or EMISSIONS (g)			458	943	6142	6858	-
NUMBER OF ENGINES				1	1	1	1
NUMBER OF TESTS				3	3	3	3
AVERAGE D _p /F ₀₀ (g/kN) or AVERAGE SN (MAX)				6.6	42.8	47.8	11.6
SIGMA (D _p /F ₀₀ in g/kN, or SN)				-	-	-	-
RANGE (D _p /F ₀₀ in g/kN, or SN)				-	-	-	-
<u>ACCESSORY LOADS</u>							
POWER EXTRACTION		0	(kW)	AT	-	POWER SETTINGS	
STAGE BLEED		0	% CORE FLOW	AT	-	POWER SETTINGS	
<u>ATMOSPHERIC CONDITIONS</u>						<u>FUEL</u>	
BAROMETER (kPa)		97.77 - 98.11		SPEC		Jet A	
TEMPERATURE (K)		286 - 295		H/C		1.95	
ABS HUMIDITY (kg/kg)		0.0061 - 0.0074		AROM (%)		17.3	
MANUFACTURER:		CFM International					
TEST ORGANIZATION:		CFM56 Evaluation Engineering					
TEST LOCATION:		PTO Site IV-D					
TEST DATES:		FROM 04 Jun 91		TO 05 Jun 91			
<u>REMARKS</u>							
1. Ref GE Report R91AEB471 and FAA Certification Report CR-897/P, July 2003							
2. Engine S/N 740-105							

Fiche de certification du moteur CFM56-5B

CHARACTERISTIC VALUE:		HC	CO	NOx	SMOKE NUMBER
D _p /F _{ee} (g/kN) or SN		7.7	32.5	68.2	7.0
AS % OF ORIGINAL LIMIT		39.3 %	27.5 %	64.6 %	32.6 %
AS % OF CAEP/2 LIMIT (NOx)				80.8 %	
AS % OF CAEP/4 LIMIT (NOx)				94.0 %	

DATA STATUS		TEST ENGINE STATUS	
-	PRE-REGULATION	x	NEWLY MANUFACTURED ENGINES
x	CERTIFICATION	-	DEDICATED ENGINES TO PRODUCTION STANDARD
-	REVISED (SEE REMARKS)	-	OTHER (SEE REMARKS)

EMISSIONS STATUS		CURRENT ENGINE STATUS	
x	DATA CORRECTED TO REFERENCE (ANNEX 16 VOLUME II)	(IN PRODUCTION, IN SERVICE UNLESS OTHERWISE NOTED)	
		-	OUT OF PRODUCTION
		-	OUT OF SERVICE

MEASURED DATA							
MODE	POWER SETTING (%F _{ee})	TIME minutes	FUEL FLOW kg/s	EMISSIONS INDICES (g/kg)			SMOKE NUMBER
				HC	CO	NOx	
TAKE-OFF	100	0.7	1.43	0.1	0.8	37.3	-
CLIMB OUT	85	2.2	1.141	0.2	0.9	28.5	-
APPROACH	30	4.0	0.366	0.5	1.7	11.2	-
IDLE	7	26.0	0.115	3.5	19.2	4.7	-
LTO TOTAL FUEL (kg) or EMISSIONS (g)			476	708	3777	8360	-
NUMBER OF ENGINES				1	1	1	1
NUMBER OF TESTS				3	3	3	3
AVERAGE D _p /F _{ee} (g/kN) or AVERAGE SN (MAX)				5	26.48	58.81	5.4
SIGMA (D _p /F _{ee} in g/kN, or SN)				-	-	-	-
RANGE (D _p /F _{ee} in g/kN, or SN)				-	-	-	-

ACCESSORY LOADS			
POWER EXTRACTION	0	(kW)	AT - POWER SETTINGS
STAGE BLEED	0	% CORE FLOW	AT - POWER SETTINGS

ATMOSPHERIC CONDITIONS		FUEL	
BAROMETER (kPa)	98.2-99.6	SPEC	Jet A
TEMPERATURE (K)	281.5-283.6	H/C	1.92
ABS HUMIDITY (kg/kg)	.0065-.0075	AROM (%)	19

MANUFACTURER:	GE
TEST ORGANIZATION:	CFM56-5B Eval Engineering
TEST LOCATION:	Techspace-Aero Facility, Liege, Belgium
TEST DATES:	FROM Nov 95 TO -

REMARKS
1. FAA Certification Report CR-797/P, June 95.
2. Engine S/N 779-194/1

Fiche de certification du moteur D-30-KU



ICAO ENGINE EXHAUST EMISSIONS DATA BANK

SUBSONIC ENGINES

ENGINE IDENTIFICATION: D-30KU
 UNIQUE ID NUMBER: 1AA003
 ENGINE TYPE: MTF

BYPASS RATIO: 2.35
 PRESSURE RATIO (π_{00}): 17.4
 RATED OUTPUT (F_{00}) (kN): 112.7

REGULATORY DATA

CHARACTERISTIC VALUE:	HC	CO	NOx	SMOKE NUMBER
D_p/F_{00} (g/kN) or SN	37.4	191.7	43.8	29.5
AS % OF ORIGINAL LIMIT	191.0 %	162.5 %	58.6 %	128.7 %
AS % OF CAEP/2 LIMIT (NOx)			73.2 %	
AS % OF CAEP/4 LIMIT (NOx)			93.5 %	

DATA STATUS

- PRE-REGULATION
 - CERTIFICATION
 x REVISED (SEE REMARKS)

TEST ENGINE STATUS

- NEWLY MANUFACTURED ENGINES
 - DEDICATED ENGINES TO PRODUCTION STANDARD
 x OTHER (SEE REMARKS)

EMISSIONS STATUS

- DATA CORRECTED TO REFERENCE
 (ANNEX 16 VOLUME II)

CURRENT ENGINE STATUS

(IN PRODUCTION, IN SERVICE UNLESS OTHERWISE NOTED)
 x OUT OF PRODUCTION (DATE: -)
 - OUT OF SERVICE

MEASURED DATA

MODE	POWER SETTING (% F_{00})	TIME minutes	FUEL FLOW kg/s	EMISSIONS INDICES (g/kg)			SMOKE NUMBER
				HC	CO	NOx	
TAKE-OFF	100	0.7	1.52	0.3	2.8	16.3	-
CLIMB OUT	85	2.2	1.3	0.4	3.7	12.6	-
APPROACH	30	4.0	0.5	1.2	11.8	5.1	-
IDLE	7	26.0	0.215	10.5	54	2.7	-
LTO TOTAL FUEL (kg) or EMISSIONS (g)			691	3753	20341	4720	-
NUMBER OF ENGINES				5	5	5	1
NUMBER OF TESTS				5	5	5	1
AVERAGE D_p/F_{00} (g/kN) or AVERAGE SN (MAX)				33.3	180.5	41.9	22.9
SIGMA (D_p/F_{00} in g/kN, or SN)				6.55	33.4	3.15	-
RANGE (D_p/F_{00} in g/kN, or SN)				-	-	-	-

ACCESSORY LOADS

POWER EXTRACTION 0 (kW)
 STAGE BLEED 0 % CORE FLOW

AT - POWER SETTINGS
 AT - POWER SETTINGS

ATMOSPHERIC CONDITIONS

BAROMETER (kPa)	102.6-102.7
TEMPERATURE (K)	292 - 294
ABS HUMIDITY (kg/kg)	.00788

FUEL

SPEC	TS-1
H/C	2
AROM (%)	18.6

MANUFACTURER: AO 'Aviadgatel'
 TEST ORGANIZATION: State Inst for Civ Aviation
 TEST LOCATION: Sheremetjevo, Moscow
 TEST DATES: FROM 19 Jul 89 TO -

REMARKS

1. Data obtained on aircraft (Il-62M)
2. In-service engine(s), tested after overhaul

Experimental characterization of the physico-chemical properties of soot particles emitted by an aircraft engine

Biomass burning and fossil fuel combustion represent significant sources of particles in the atmosphere. Soot particles emitted by aircraft engines in the troposphere and lower stratosphere are also of importance since they have an impact on the global radiative forcing in regard with condensation trails (contrails) that can evolve into cirrus clouds. Moreover, it has already been established that these particles have an impact on the air quality, and their sub-micrometer size is now a matter of questions regarding their effect on human health.

This study is devoted to determine the physico-chemical properties of soot particles emitted by commercial aircraft engines, through various experiments. Soot samples are collected behind CFM56-5C and CFM56-5B aircraft engines, in a test bench that belongs to the SNECMA company (SAFRAN group). These engines are usually used to respectively power long- and medium- hauls.

Various experimental techniques such as transmission electron microscopy (TEM), scanning electron microscopy (SEM), X-ray energy dispersive spectroscopy (XREDS), and Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) are used to study the soot primary particles morphology, structure, size distribution, elemental chemical composition, and to determine the surface functional groups. Fractal dimension (D_f) and gyration diameters (d_g) of soot aggregates are also determined.

Our experimental data show that:

- soot aggregates emitted by both engine have similar values of the fractal dimension
- soot primary particles and aggregates always exhibit log-normal size distributions and have similar elemental chemical composition and functional groups
- aggregates have different gyration diameters according to the engine used

We also point out that the sample preparation, which is a prerequisite for SEM studies, has a strong influence on the geometric mean value of the primary particles size distribution determined from micrographs analyses. Consequently, we claim that TEM is more suitable than SEM to characterize the size distribution of soot primary particles emitted by engines.

Keywords:

Soot, aircraft-engine, electron microscopy, size distribution, fractal dimension, structure, morphology, elemental chemical composition

RÉSUMÉ

Les émissions liées à la combustion de la biomasse et des carburants fossiles constituent des sources significatives de particules dans l'atmosphère. Les particules de suie émises par les turboréacteurs aéronautiques dans la basse stratosphère et la haute troposphère, zones sensibles de l'atmosphère, ont un impact sur le forçage radiatif global de par la formation de traînées de condensation qui peuvent évoluer en nuage de type cirrus. Par ailleurs, ces particules de taille submicrométrique, dont l'impact sur la qualité de l'air est avéré, sont également source de questionnement quant à leur(s) effet(s) sur la santé publique.

La présente étude a pour objet la détermination expérimentale des caractéristiques physiques et chimiques des particules de suie émises par des turboréacteurs d'avions commerciaux. Les prélèvements sont effectués sur un banc d'essai de la société SNECMA (groupe SAFRAN) par un dispositif mis au point au cours de ce travail et localisé derrière des turboréacteurs CFM56-5C et CFM56-5B qui équipent respectivement des avions long-courriers et moyen-courriers.

Diverses techniques expérimentales telles que la microscopie électronique en transmission (MET), la microscopie électronique à balayage (MEB), la spectrométrie dispersive d'énergie de rayons X (XREDS), et la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) sont mises en œuvre pour étudier la morphologie, la structure, la distribution en taille, la composition chimique élémentaire des particules primaires de suie, et la nature des groupes fonctionnels présents à leur surface. La dimension fractale (D_f) des agrégats de suie et leur diamètre de giration (d_g) sont également établis.

Les résultats expérimentaux montrent que les suies émises par les deux turboréacteurs étudiés présentent :

- des valeurs similaires de la dimension fractale des agrégats
- des distributions en taille log-normales pour les particules primaires et les agrégats
- des compositions chimiques élémentaires et des groupes fonctionnels très similaires
- des diamètres de giration des agrégats qui diffèrent

Par ailleurs, nous montrons que la phase de préparation des échantillons, préalable aux observations en MEB, a une influence importante sur la valeur déterminée de la moyenne géométrique de la distribution en taille des particules primaires. Par conséquent, nous préconisons de réaliser l'étude des caractéristiques physiques des particules primaires de suie aéronautique par MET plutôt que par MEB.

Mots clés :

Suies, turboréacteur, microscopie électronique, distribution en taille, dimension fractale, structure, morphologie, composition chimique élémentaire